



Normandie Université

**THESE**

**Pour obtenir le diplôme de doctorat**

**Spécialité Génie des Procédés**

**Préparée au sein de l'Université de Caen Normandie**

**Détection des ruptures de gaines sur RNR-Na par spectrométrie gamma hauts taux de comptage**

**Présentée et soutenue par  
Emmanuel ROHEE**

**Thèse soutenue publiquement le 7 décembre 2016  
devant le jury composé de**

M. Gilles BAN	Professeur des Universités à l'ENSICAEN	Président de jury
M. Stéphane NORMAND	Ingénieur HDR au CEA	Directeur de thèse
M. Christian JAMMES	Ingénieur HDR au CEA	Directeur de thèse
Mme Elsa MERLE LUCOTTE	Professeur des Universités à PHELMA	Rapporteur
M. Patrick CHAUCHEPRAT	Ingénieur HDR à AREVA	Rapporteur
M. Romain COULON	Ingénieur au CEA	Encadrant

**Thèse dirigée par Stéphane NORMAND et Christian JAMMES, conduite au sein du Laboratoire Capteurs et Architectures Electroniques, CEA LIST**

**ED SIMEM**





## REMERCIEMENTS

Je souhaite remercier en premier lieu mes directeurs de thèse, M. Stéphane Normand et M. Christian Jammes. Merci à vous deux d'avoir accepté cette fonction et d'avoir su vous rendre disponibles pour des échanges toujours d'un grand intérêt. Merci Stéphane pour l'accueil chaleureux que tu m'as réservé à mon arrivée dans ton laboratoire.

Je remercie mes rapporteurs de thèse, Mme Elsa Merle Lucotte et M. Patrick Chauchepat, d'avoir accepté de se pencher sur ces trois années de travaux.

Je remercie M. Gilles Ban d'avoir accepté la tâche d'examineur ainsi que la présidence du jury.

Un immense merci à mon encadrant M. Romain Coulon. Ta personne a été un élément décisif dans mon choix de m'embarquer dans cette thèse, autant que le sujet lui-même (pour ne pas dire plus). Ce fut un plaisir pour moi d'évoluer à tes côtés durant ces trois années. Ta sympathie et ta bienveillance ont été des moteurs pour moi. Merci pour ta confiance.

Mes remerciements appuyés vont également à M. Frédérick Carrel. Merci à toi pour l'intérêt que tu as porté à mes travaux et tes nombreux et précieux conseils, tant sur l'aspect scientifique que sur la gestion de ces trois années.

Merci à M. Thomas Dautremer et M. Eric Barat. Le temps que vous m'avez accordé ainsi que votre pédagogie ont été d'une importance toute particulière dans mon appréhension des outils ADONIS et SINBAD.

Un grand merci au SIREN et tout particulièrement à M. Luc Marchand pour son aide plus que précieuse dans la réalisation des essais sur la boucle ISABELLE 1 du réacteur OSIRIS. Merci pour ton investissement, ta pédagogie et ta sympathie.

Je remercie l'ensemble des membres du LCAE, permanents et non permanents, avec lesquels j'ai eu le plaisir d'évoluer durant ces dernières années. Merci à vous pour ces moments d'échanges, scientifiques ou non, ces instants de rigolade et ces nouvelles amitiés. S'il est difficile de citer tout le monde, j'adresse un clin d'œil particulier à Jonathan, doctorant tout comme moi et co-bureau de la première heure. Ce fut un plaisir de partager avec toi doutes et joies de nos thèses respectives durant ces trois années. Je remercie aussi particulièrement Eva, ma « Claudy ». Merci pour ces nombreux moments de rigolade, ton imitation de l'accent belge et ton soutien dans cette aventure. Un clin d'œil également pour l'équipe des « Chem Chem », n'étant pas chimiste, nous avons su nous retrouver sur de nombreux autres sujets.

Enfin, je remercie ma famille ainsi que tous mes amis pour leur soutien sans faille durant ces trois années.

# SOMMAIRE

<b>1 INTRODUCTION GÉNÉRALE.....</b>	<b>1</b>
<b>2 LES REACTEURS GENERATION IV, LE PROJET ASTRID ET L'INSTRUMENTATION NUCLEAIRE DEDIEE A LA FILIERE SODIUM.....</b>	<b>4</b>
2.1. INTRODUCTION.....	4
2.2. LES REACTEURS DE QUATRIEME GENERATION [1].....	5
2.2.1. <i>Les défis de l'énergie nucléaire</i> .....	5
2.2.2. <i>Le Forum International Génération IV (FIG)</i> .....	5
2.2.3. <i>Les filières de la quatrième génération [3] [4]</i> .....	6
2.2.4. <i>La filière sodium [7]–[10]</i> .....	12
2.2.5. <i>ASTRID [15]–[17]</i> .....	19
2.3. L'INSTRUMENTATION POUR ASTRID.....	23
2.3.1. <i>Généralités</i> .....	23
2.3.2. <i>La détection de ruptures de gaines (DRG)</i> .....	24
2.4. CONCLUSION ET PERSPECTIVES.....	34
2.4.1. <i>Synthèse du REX sur les mesures DRG/LRG</i> .....	34
2.4.2. <i>Perspectives</i> .....	35
<b>3 PHENOMENOLOGIE DES RUPTURES DE GAINES.....</b>	<b>36</b>
3.1 INTRODUCTION.....	36
3.2 EVOLUTION DE L' AIGUILLE COMBUSTIBLE AVEC L' IRRADIATION.....	36
3.2.1 <i>L'aiguille combustible</i> .....	36
3.2.2 <i>Gradient de température</i> .....	38
3.2.3 <i>Distribution en oxygène</i> .....	39
3.2.4 <i>Réagencement du combustible</i> .....	40
3.3 LES PRODUITS DE FISSION [31], [37]–[39].....	41
3.3.1 <i>La production de produits de fission</i> .....	41
3.3.2 <i>La migration des produits de fission</i> .....	45
3.3.3 <i>Le joint oxyde gaine (JOG) [37], [45]–[47]</i> .....	48
3.4 LES RUPTURES DE GAINES.....	49
3.4.1 <i>Evolution du combustible et conséquences sur la gaine</i> .....	49
3.4.2 <i>Les différentes ruptures de gaine [19], [30], [49]</i> .....	50
3.4.3 <i>La réaction oxyde-sodium (ROS) [50], [51]</i> .....	51
3.4.4 <i>Le relâchement des produits de fission dans le sodium</i> .....	52
3.5 CONCLUSION.....	53
<b>4 ETUDES THEORIQUES PAR SIMULATIONS MONTE-CARLO.....</b>	<b>55</b>

4.1 INTRODUCTION .....	55
4.2 OPTIMISATION DU POSTE DND.....	56
4.2.1 Principe de la mesure DND .....	56
4.2.2 Motivations de l'optimisation.....	57
4.2.3 Optimisation du poste de mesure par simulation Monte-Carlo .....	58
4.2.4 Validation expérimentale .....	67
4.3 ETUDE DE FAISABILITE THEORIQUE DE LA SPECTROMETRIE GAMMA HAUTS TAUX DE COMPTAGE SUR LE SODIUM PRIMAIRE .....	69
4.3.1 Les produits de fission d'intérêt.....	69
4.3.2 Estimation des activités minimales détectables.....	70
4.3.3 Faisabilité de la spectrométrie gamma.....	87
4.4 CONCLUSION.....	94
<b>5 LES TECHNOLOGIES POUR LA SPECTROMETRIE GAMMA .....</b>	<b>97</b>
5.1 INTRODUCTION .....	97
5.2 LES CHAINES DE SPECTROMETRIE GAMMA ET LE TRAITEMENT DES IMPULSIONS HPGe..	97
5.2.1 Principe [78], [87], [88].....	97
5.2.2 Limitations.....	99
5.3 LA CHAINE DE SPECTROMETRIE ADONIS .....	101
5.3.1 Le modèle d'état.....	101
5.3.2 Le filtre de Kalman.....	103
5.3.3 Le lisseur de Kalman bimodal.....	104
5.4 LE TRAITEMENT CONVENTIONNEL DES SPECTRES .....	108
5.5 LE CODE SINBAD.....	109
5.5.1 Le concept de SINBAD.....	109
5.5.2 L'étude comparative SINBAD/méthode conventionnelle .....	111
5.6 LE SUIVI TEMPOREL DES AIRES NETTES .....	120
5.6.1 Les algorithmes développés .....	120
5.6.2 SINBAD 2D.....	125
5.6.3 Comparaison entre les algorithmes développés au sein de cette thèse et SINBAD 2D .....	126
5.7 CONCLUSION.....	127
<b>6 SUIVI DE RUPTURES DE GAINES SUR LA BOUCLE ISABELLE 1 PAR SPECTROMETRIE GAMMA HAUTS TAUX DE COMPTAGE .....</b>	<b>129</b>
6.1 INTRODUCTION .....	129
6.2 LE REACTEUR OSIRIS .....	130
6.3 LA BOUCLE D'IRRADIATION ISABELLE 1 .....	131
6.3.1 Descriptif.....	131
6.3.2 Les rampes de puissance .....	132

6.4 LE POSTE DE MESURE .....	134
6.4.1 <i>Objectif</i> .....	134
6.4.2 <i>Mise en œuvre</i> .....	134
6.4.3 <i>Activités volumiques au point de mesure</i> .....	138
6.5 LES CAMPAGNES D’ESSAIS .....	144
6.5.1 <i>Rampe de puissance standard sans perte d’étanchéité</i> .....	144
6.5.2 <i>La rampe de puissance standard avec perte d’étanchéité</i> .....	148
6.5.3 <i>La rampe de forte puissance avec perte d’étanchéité</i> .....	154
6.6 CONCLUSION .....	157
<b>7 CONCLUSION GENERALE.....</b>	<b>159</b>
<b>REFERENCES .....</b>	<b>163</b>

## LISTE DES TABLEAUX

TABLEAU 2-1 : VUE D'ENSEMBLE DES SIX FILIERES ENVISAGEES POUR LA QUATRIEME GENERATION.....	6
TABLEAU 2-2 : RNR-NA EXPERIMENTAUX (ORDRE ALPHABETIQUE DES PAYS) [12].....	13
TABLEAU 2-3 : RNR-NA PROTOTYPES OU DE DEMONSTRATION [12].....	14
TABLEAU 2-4 : RNR-NA DE PUISSANCE [12].....	14
TABLEAU 2-5 : PF SUIVIS PAR L'INSTRUMENTATION CONVENTIONNELLE EN RNR-NA .....	35
TABLEAU 3-1 : TAUX DE PRODUCTION MOYEN (%) DES PRODUITS DE FISSION DANS UN OXYDE UO <sub>2</sub> ET MOX A 60 GWD/T (SPECTRE THERMIQUE) ET DANS UN OXYDE (U,Pu)O <sub>2</sub> A 10 AT % (SPECTRE RAPIDE) [31].....	43
TABLEAU 4-1 : CLASSIFICATION DES PRECURSEURS POUR UN COMBUSTIBLE TYPE (U,Pu)O <sub>2</sub> [59] .....	58
TABLEAU 4-2 : RATIO DES EMISSIONS NEUTRONIQUES DES DIFFERENTS PRECURSEURS (NORMALISE A L'IODE 137) .....	60
TABLEAU 4-3 : TERMES SOURCE.....	60
TABLEAU 4-4 : NOMBRE MOYEN DE COLLISIONS NECESSAIRES POUR REDUIRE L'ENERGIE D'UN NEUTRON DE 2 MEV A 25 MEV PAR DIFFUSION ELASTIQUE [66] .....	61
TABLEAU 4-5 : ACTIVITES VOLUMIQUES DES PRODUITS D'ACTIVATION EN CUVE EN FONCTIONNEMENT NORMAL.....	72
TABLEAU 4-6 : PRINCIPALES EMISSIONS GAMMA DES PRODUITS D'ACTIVATION.....	73
TABLEAU 4-7 : EMISSIONS BETA DES PRODUITS D'ACTIVATION.....	73
TABLEAU 4-8 : PICS SOMME OBSERVES DANS LE SPECTRE SIMULE DES PRODUITS D'ACTIVATION POUR DES TEMPS DE TRANSIT ET D'ACQUISITION DE 10 SECONDES .....	76
TABLEAU 4-9 : AMD EN BQ.M <sup>-3</sup> POUR UN TEMPS D'ACQUISITION DE 10 SECONDES AVEC LA DIODE GR2021 .....	82
TABLEAU 4-10 : AMD EN BQ.M <sup>-3</sup> POUR UN TEMPS D'ACQUISITION DE 10 MINUTES AVEC LA DIODE GR2021 .....	83
TABLEAU 4-11 : AMD EN BQ.M <sup>-3</sup> POUR UN TEMPS D'ACQUISITION DE 10 SECONDES AVEC LA DIODE GEM40P.....	85
TABLEAU 4-12 : AMD EN BQ.M <sup>-3</sup> POUR UN TEMPS D'ACQUISITION DE 10 MINUTES AVEC LA DIODE GEM40P.....	87

TABLEAU 4-13 : AMD POUR LES DEUX DIODES POUR UN TEMPS D'ACQUISITION DE 10 MINUTES ET ACTIVITES VOLUMIQUES EN SORTIE D'ASSEMBLAGE DECOULANT DU MODELE .....	94
TABLEAU 5-1 : APPORTS DU SYSTEME ADONIS POUR LA SPECTROMETRIE GAMMA [98] .....	107
TABLEAU 5-2 : RESULTATS DE LA DECONVOLUTION DU SPECTRE ADD1N1.....	113
TABLEAU 5-3 : BIAIS DANS L'ESTIMATION DE L'ENERGIE DU PIC A 609,26 KEV .....	113
TABLEAU 5-4 : BIAIS SUR L'ESTIMATION DE L'ENERGIE DU PIC NON DECALE A 661,6 KEV .....	116
TABLEAU 5-5 : BIAIS SUR L'ENERGIE ESTIMEE DU PIC A 661,6 KEV POUR UNE SEPARATION DES PICS DE 720 eV (0,6 FWHM) ET POUR DIFFERENTS RATIOS DES AIRES NETTES.....	117
TABLEAU 5-6 : BIAIS SUR L'ESTIMATION DE L'ENERGIE DU PIC DE <sup>57</sup> Co .....	119
TABLEAU 6-1 : COMPARAISON ENTRE EFFICACITES DE DETECTION EXPERIMENTALE ET SIMULEE, AVANT ET APRES AJUSTEMENT DU MODELE MONTE CARLO .....	140
TABLEAU 6-2 : RADIONUCLEIDES IDENTIFIES DANS LE SPECTRE GAMMA .....	147
TABLEAU 6-3 : RADIONUCLEIDES IDENTIFIES DANS LE SPECTRE GAMMA LORS DE LA RUPTURE DE GAIN. L'IDENTIFICATION EST REALISEE SUR LA PLAGE TEMPORELLE RELATIVE A LA FIGURE 6-18.....	152
TABLEAU 6-4 : RADIOELEMENTS IDENTIFIES DURANT LES TRENTE PREMIERES SECONDES DE LA RUPTURE DE GAIN .....	156



## LISTE DES FIGURES

FIGURE 2-1 : CHRONOLOGIE DES DIFFERENTES GENERATIONS DE REACTEURS NUCLEAIRES .....	6
FIGURE 2-2 : PRINCIPE DU RTHT.....	7
FIGURE 2-3 : PRINCIPE DU RES.....	8
FIGURE 2-4 : PRINCIPE DU RSF.....	9
FIGURE 2-5 : PRINCIPE DU RNR-G.....	10
FIGURE 2-6 : PRINCIPE DU RNR-PB .....	11
FIGURE 2-7 : INVESTISSEMENT DES MEMBRES DANS LES DIFFERENTS PROJETS [6].....	12
FIGURE 2-8 : AVANCEMENTS PREVISIONNELS DES DIFFERENTS PROJETS [6] .....	12
FIGURE 2-9 : HOTTE DE MANUTENTION DES GROS COMPOSANTS DE PHENIX .....	15
FIGURE 2-10 : SUPERPHENIX VU D'AVION.....	16
FIGURE 2-11 : PRINCIPE DU RNR-NA .....	19
FIGURE 2-12 : COEUR CFV DANS SA VERSION V3 [14].....	21
FIGURE 2-13 : ORGANISATION GENERALE DU PROJET ASTRID [14].....	22
FIGURE 2-14 : PLANNING GLOBAL DU PROJET ASTRID [14].....	22
FIGURE 2-15 : DIAGRAMME D'EVOLUTION DES RUPTURES DE GAINES COMBUSTIBLE [21] .....	25
FIGURE 2-16 : MODULE DE PRELEVEMENT D'ARGON DE SUPERPHENIX [21].....	26
FIGURE 2-17 : MECANISME DE LA LRG [21].....	27
FIGURE 2-18 : SCHEMA GENERAL DRG-LRG DE PHENIX [22].....	29
FIGURE 2-19 : SYSTEME DE PRELEVEMENT (A GAUCHE) ET VUE EN COUPE DU BLOC DND DE LA DRG SODIUM DE PHENIX [21].....	31
FIGURE 2-20 : SYSTEME DE PRELEVEMENT SUR SUPERPHENIX - DRG SODIUM (RGS) ET LRG SODIUM (1-6) [20].....	32
FIGURE 3-1 : ASSEMBLAGE COMBUSTIBLE D'UN RNR-NA (A GAUCHE), EXEMPLES DE CONCEPTIONS D'AIGUILLES COMBUSTIBLES POUR UN RNR-NA (A DROITE) [8]. .....	38
FIGURE 3-2 : EXEMPLE DE PROFIL RADIAL DE TEMPERATURE DANS UN CRAYON COMBUSTIBLE DE REACTEUR RAPIDE ET DANS UN REP (A) ; TEMPERATURES CALCULEES POUR UNE AIGUILLE PHENIX IRRADIEE A $430 \text{ W.cm}^{-1}$ (B).....	39
FIGURE 3-3 : TAUX DE PRODUCTION RELATIFS DES PRODUITS DE FISSION POUR L' $^{235}\text{U}$ ET LE $^{239}\text{Pu}$ ET POUR DES FLUX DE NEUTRONS THERMIQUE ET RAPIDE [31] .....	42

FIGURE 3-4 : PRINCIPAUX PRODUITS DE FISSION ET LEUR ETAT CHIMIQUE [31] .....	42
FIGURE 3-5 : BULLES INTRAGRANULAIRES ET LEUR EVOLUTION EN BULLES INTERGRANULAIRES AU NIVEAU DU JOINT DE GRAIN [41] .....	46
FIGURE 3-6 : ASPECT DU COMBUSTIBLE ET PROFIL RADIAL DES GAZ DE FISSION ET DU CESIUM DANS UN RNR-NA A 7% DE TAUX DE COMBUSTION [31] .....	47
FIGURE 3-7 : DISTRIBUTIONS AXIALES DE CREATION ET DE REPARTITION DU CESIUM DANS UNE AIGUILLE RNR-NA A TAUX DE COMBUSTION ELEVE (23% FIMA) [31].....	48
FIGURE 3-8 : ILLUSTRATION DU JOG [48] .....	49
FIGURE 4-1 : SCHEMA DE PRINCIPE DU POSTE DND.....	56
FIGURE 4-2 : PERTE DE COMPTAGE NEUTRONIQUE POUR DIFFERENTS DETECTEURS CONNECTES A UN PREAMPLIFICATEUR DE COURANT DE TYPE BAI SOUS UN FAISCEAU DE <sup>137</sup> Cs POUR UNE SOURCE DE NEUTRONS CONSTANTE [67].....	62
FIGURE 4-3 : MODELISATION MCNPX DE LA CONFIGURATION PLOMB-POLYETHYLENE.....	64
FIGURE 4-4 : FOM EN FONCTION DES EPAISSEURS DE PLOMB ET DE POLYETHYLENE .....	65
FIGURE 4-5 : REPOSE AUX NEUTRONS RETARDES POUR DIFFERENTES EPAISSEURS DE PLOMB ET DE POLYETHYLENE.....	65
FIGURE 4-6 : SIGNAL NEUTRON EN FONCTION DE L' EPAISSEUR TOTAL DE GRAPHITE .....	66
FIGURE 4-7 : DEBIT DE DOSE EN FONCTION DE L' EPAISSEUR TOTAL DE GRAPHITE.....	66
FIGURE 4-8 : GEOMETRIE DU POT DND OPTIMISE.....	66
FIGURE 4-9 : DISPOSITIF EXPERIMENTAL .....	67
FIGURE 4-10 : SPECTRE EN ENERGIE D'UNE SOURCE AMLi [73] .....	68
FIGURE 4-11 : COMPTAGE NEUTRON INTEGRE SUR 5 MINUTES EN FONCTION DU SEUIL DE DISCRIMINATION .....	68
FIGURE 4-12 : GEOMETRIE MCNPX DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL .....	69
FIGURE 4-13 : TAUX DE COMPTAGE SIMULES (MCNPX) POUR DIFFERENTES PROPORTIONS D'HYDROGENE DANS LE CHARBON ANTHRACITE .....	69
FIGURE 4-14 : MODELE MCNPX DU POSTE DE SPECTROMETRIE GAMMA DU SODIUM COMPOSE D'UNE DIODE HPGe (CRISTAL GERMANIUM EN BLEU, ALUMINIUM EN VERT) EN FACE DE LA CAPACITE DE SODIUM (EN ROUGE).....	70
FIGURE 4-15 : VARIATIONS DU TAUX DE COMPTAGE SORTANT ET DU TEMPS MORT D'ADONIS EN FONCTION DU TAUX DE COMPTAGE INCIDENT [75].....	71

FIGURE 4-16 : EVOLUTION DU TAUX DE COMPTAGE INCIDENT LIE A L'ACTIVITE GAMMA DU SODIUM 24 EN FONCTION DE LA DISTANCE SOURCE-DETECTEUR (TRANSIT 10 SECONDES)	72
FIGURE 4-17 : INFLUENCE DU TERME SOURCE BETA SUR LE SPECTRE GAMMA SIMULE A BASSE ENERGIE (CAS DU SODIUM 24)	74
FIGURE 4-18 : DISTRIBUTION DES TEMPS D'OCCUPATION DU SYSTEME	75
FIGURE 4-19 : SPECTRES SIMULES DES PRODUITS D'ACTIVATION AVEC ET SANS EMPILEMENT POUR DES TEMPS DE TRANSIT ET D'ACQUISITION DE 10 SECONDES	76
FIGURE 4-20 : ILLUSTRATION POUR LE CALCUL DU FOND <i>B</i> (EXTRAIT DE [78])	77
FIGURE 4-21 : RENDEMENTS DE DETECTION SIMULES DU POSTE DE MESURE POUR LES DEUX DETECTEURS HPGe CONSIDERES DANS CETTE ETUDE	78
FIGURE 4-22 : AMD DU XENON 133 (A GAUCHE) ET DU XENON 135 (A DROITE) SELON LE DETECTEUR UTILISE POUR DIFFERENTS TEMPS DE TRANSIT ET TEMPS D'ACQUISITION	80
FIGURE 4-23 : DEPENDANCE DES COEFFICIENTS DE DIFFUSION DU KRYPTON (NOIR) ET DU XENON (ROUGE) EN FONCTION DE LA TEMPERATURE [82]	90
FIGURE 4-24 : VALEUR DE <i>j</i> POUR TROIS ISOTOPES DU XENON [82]	90
FIGURE 4-25 : ACTIVITES VOLUMIQUES POUR LES DIFFERENTS PRODUITS DE FISSION GAZEUX EN SORTIE D'ASSEMBLAGE	93
FIGURE 4-26 : ACTIVITES VOLUMIQUES RELACHEES CUMULEES DANS LE TEMPS	93
FIGURE 5-1 : REPONSE IMPULSIONNELLE CUSP [88]	99
FIGURE 5-2 : EVOLUTION DE LA FWHM EN FONCTION DU TAUX DE COMPTAGE TOTAL POUR LE PIC A 59 KEV DE L'AMERICIUM 241 [97]	106
FIGURE 5-3 : DERIVE DE L'AIRES NETTE EN FONCTION DU TAUX DE COMPTAGE TOTAL (SOURCE REFERENCE : <sup>60</sup> Co ; SOURCE PARASITE : <sup>137</sup> Cs) [97]	107
FIGURE 5-4 : ILLUSTRATION DE LA DECONVOLUTION DE SINBAD SUR UN SPECTRE GAMMA DENSE DE PRODUITS DE PHOTOFISSION	111
FIGURE 5-5 : SPECTRE DE REFERENCE DE <sup>226</sup> Ra AVEC SES DESCENDANTS ISSU DU TEST AIEA	112
FIGURE 5-6 : BIAIS SUR LES AIRES NETTES ESTIMEES DU PIC A 609,26 KEV POUR LES DIFFERENTS RATIOS ETUDIES (ERREURS A 2σ)	114
FIGURE 5-7 : SUPERPOSITION DES DEUX PICS DE <sup>137</sup> Cs POUR UNE DISTANCE EN ENERGIE DE 1,2 KEV ET UN RATIO DES AIRES NETTES DE 1 (ILLUSTRATION SINBAD)	115
FIGURE 5-8 : BIAIS SUR L'AIRES NETTE RELATIVE POUR UNE SEPARATION DES PICS ALLANT DE 0,2 A 1 FWHM (ERREURS A 2σ)	116

FIGURE 5-9 : BIAIS SUR LES AIRES NETTES RELATIVES DU PIC A 661,6 KEV POUR UNE SEPARATION DES PICS DE 0,6 FWHM POUR DIFFERENTS RATIOS (ERREURS A $2\sigma$ ).....	118
FIGURE 5-10 : CONVOLUTION DES PICS DE $^{57}\text{Co}$ ET $^{152}\text{Eu}$ (SINBAD) .....	118
FIGURE 5-11 : BIAIS SUR LES AIRES NETTES DU PIC DE $^{57}\text{Co}$ (ERREURS A $2\sigma$ ) .....	119
FIGURE 5-12 : ILLUSTRATION DE SINBAD 2D SUR LE SUIVI TEMPOREL DES PICS D'ABSORPTION TOTALE LORS D'UNE RUPTURE DE GAINÉ SUR LA BOUCLE ISABELLE-1 .....	127
FIGURE 5-13 : SUIVI DE L'EVOLUTION DE L'AIRES NETTE DU PIC A 661,6 KEV DU $^{137}\text{Cs}$ VIA L'ALGORITHME MATLAB DEVELOPPE ET SINBAD 2D.....	127
FIGURE 6-1 : SCHEMA DE PRINCIPE DE LA BOUCLE D'IRRADIATION ISABELLE 1 .....	132
FIGURE 6-2 : SCHEMA DU DEROULEMENT D'UNE RAMPE DE PUISSANCE .....	133
FIGURE 6-3 : PARTIE DU CIRCUIT A TERRE AU VOISINAGE DU MUR PISCINE ET TUYAUTERIE VISEE PAR LE DETECTEUR, LES CIRCUITS ALLER (NOIR) ET RETOUR (ROUGE) SONT CONTENUS DANS UN MEME TUBE ASSURANT LA FONCTION DE SECONDE BARRIERE. ....	135
FIGURE 6-4 : GENERATEUR X UTILISE POUR LA RADIOGRAPHIE DE LA TUYAUTERIE .....	135
FIGURE 6-5 : POSITIONS DES DIFFERENTS CIRCUITS, ALLER EN VERT, RETOUR EN BLEU .....	136
FIGURE 6-6 : DETECTEUR CANBERRA GR2021. A GAUCHE : VUE DU DETECTEUR. A DROITE : PLAN COTE DE CES DIMENSIONS.....	136
FIGURE 6-7 : DETECTEUR HPGe ET BLINDAGE ASSOCIE.....	137
FIGURE 6-8 : SOLUTIONS PROVISoire (A GAUCHE) ET DEFINITIVE (A DROITE) POUR LA RECONSTITUTION DE LA PAROI DE L'ENCEINTE .....	137
FIGURE 6-9 : POSTE D'ACQUISITION .....	138
FIGURE 6-10 : MODELISATION MCNPX DU POSTE DE MESURE. A GAUCHE : VUE 3D. A DROITE : COUPE 2D.....	141
FIGURE 6-11 : REponse DU DETECTEUR POUR DIFFERENTES LONGUEURS DE TUYAUTERIE MODELISEES (CIRCUIT « ALLER ») .....	142
FIGURE 6-12 : RENDEMENT DE DETECTION POUR LE CIRCUIT « ALLER » (VERT), « RETOUR » (BLEU) ET TOTAL (ROUGE), INCERTITUDES A $1\sigma$ EN POINTILLES.....	142
FIGURE 6-13 : TAUX DE COMPTAGE TOTAL EN FONCTION DU TEMPS.....	144
FIGURE 6-14 : SPECTRE EN ENERGIE DE L'IRRADIATION COMPLETE.....	146
FIGURE 6-15 : ACTIVITES VOLUMIQUES DE L'OXYGENE 19 ET DU MANGANESE 56 AU POINT DE MESURE (EN GRAS) ET INCERTITUDES ASSOCIEES A $2\sigma$ (EN FIN).....	148

FIGURE 6-16 : ACTIVITES VOLUMIQUES XENON 139 AU POINT DE MESURE (EN GRAS) ET INCERTITUDES ASSOCIEES A $2\sigma$ (EN FIN) .....	148
FIGURE 6-17 : TAUX DE COMPTAGE TOTAL EN FONCTION DU TEMPS. LE PIC IDENTIFIÉ « 1 » FAIT L’OBJET D’UN ZOOM EN FIGURE 6-18.....	149
FIGURE 6-18 : TAUX DE COMPTAGE TOTAL EN FONCTION DU TEMPS (ZOOM SUR L’INSTANT DE LA RUPTURE) .....	149
FIGURE 6-19 : TAUX DE COMPTAGE TOTAL EN FONCTION DU TEMPS (ZOOM SUR LA ZONE « 1.2 ») .....	150
FIGURE 6-20 : TAUX DE COMPTAGE TOTAL EN FONCTION DU TEMPS (ZOOM SUR LES RINÇAGES) .....	150
FIGURE 6-21 : SPECTRE GAMMA ENREGISTRE SUR LA PLAGE TEMPORELLE RELATIVE A LA FIGURE 6-18 .....	151
FIGURE 6-22 : TAUX DE COMPTAGE ENREGISTRE POUR DIFFERENTS PRODUITS DE FISSION GAZEUX ET VOLATILES.....	153
FIGURE 6-23 : TAUX DE COMPTAGE ENREGISTRE POUR DIFFERENTS PRODUITS DE FISSION GAZEUX ET VOLATILES (ZOOM SUR LES FAIBLES TAUX DE COMPTAGE) .....	153
FIGURE 6-24 : ÉVOLUTION DU TAUX DE COMPTAGE TOTAL ENREGISTRE DANS LES PREMIERS INSTANTS APRES LA RUPTURE DE GAINÉ .....	154
FIGURE 6-25 : TAUX DE COMPTAGE TOTAL SUITE A LA RECUPERATION DE LA CHAINE ADONIS .....	155
FIGURE 6-26 : SPECTRES ACQUIS EN FONCTION DU TAUX DE COMPTAGE .....	155
FIGURE 6-27 : ACTIVITES VOLUMIQUES DES PRODUITS DE FISSION GAZEUX ET VOLATILES DANS LES PREMIERS INSTANTS DE LA RUPTURE DE GAINÉ .....	157



# 1 INTRODUCTION GÉNÉRALE

La production d'énergie constitue un enjeu majeur pour les sociétés du 21<sup>ème</sup> siècle. Depuis les années 50, l'énergie nucléaire occupe une place clé au niveau du mix énergétique mondial. En dépit des catastrophes nucléaires qui ont eu lieu à Tchernobyl en 1986 et à Fukushima en 2011 et des progrès réalisés dans l'exploitation des énergies renouvelables, l'énergie d'origine nucléaire occupe toujours une part importante de la production d'électricité au niveau mondial. En France, la part du nucléaire est prépondérante dans le mix énergétique et représente environ 77% de l'électricité produite. Si le débat sur la sortie du nucléaire est présent dans nos sociétés, cette source d'énergie reste à l'heure actuelle une solution incontournable et une réponse efficace aux défis majeurs qui nous attendent, à savoir le réchauffement climatique et la raréfaction des énergies fossiles.

Différentes générations de réacteurs se sont succédé depuis les années 50 et l'émergence du nucléaire civil. Si la génération 3+ est aujourd'hui commercialisée au travers de l'EPR, un consortium d'Etats, dont la France fait partie, réfléchit d'ores et déjà à la future quatrième génération de réacteurs nucléaires au travers du Forum International Génération IV. Les réacteurs issus de cette initiative devront permettre de répondre aux nombreuses problématiques de pérennisation du combustible, de limitation de la production de déchets, de sûreté, de non-prolifération et de coût de l'énergie. Parmi les six filières à l'étude, la filière sodium apparaît comme une candidate intéressante pour incarner cette nouvelle génération, grâce à une maturité et un retour d'expérience conséquent acquis depuis des années avec notamment les réacteurs Phénix et Superphénix en France. Aujourd'hui, la France, via le CEA, est en charge de l'élaboration d'un avant-projet détaillé visant à mettre au point un démonstrateur industriel de réacteur à neutrons rapides refroidi au sodium liquide (RNR-Na) : le réacteur ASTRID (*Advanced Sodium Technological Reactor for Industrial Demonstration*).

Le travail de recherche présenté dans ce mémoire s'inscrit dans l'objectif du renforcement de l'aspect sûreté des RNR-Na et d'ASTRID. Cette étude s'intéresse plus particulièrement à l'instrumentation nucléaire pouvant être déployée sur ce type de réacteurs et visant à garantir l'intégrité de la première barrière de confinement constituée par la gaine de l'aiguille combustible. Dans les réacteurs à eau sous pression (REP), la pollution mineure du caloporteur primaire par les produits de fission suite à une perte d'étanchéité, communément appelée « rupture de gaine », est tolérée, ce qui ne sera plus le cas pour les RNR-Na de quatrième génération. En effet, l'ouverture de la gaine combustible pourrait à terme entraîner un contact entre le combustible et le sodium caloporteur provoquant la vaporisation de ce dernier. Le coefficient de vide d'un RNR-Na étant positif, une telle vaporisation entraînerait un surcroît de réactivité et le risque d'un accident grave. De plus, le rejet de matière combustible dans le sodium primaire est potentiellement source de BTI (Bouchage Total Instantané) des assemblages, conduisant à une augmentation de la température de ces derniers et pouvant entraîner *in fine* la fusion des aiguilles combustible. Pour toutes ces raisons, le développement de l'instrumentation pour la détection de ruptures de gaines (DRG) représente un enjeu majeur de sûreté. Une instrumentation dédiée à cette problématique existe et fut notamment déployée sur les réacteurs Phénix et Superphénix. Cette instrumentation repose sur la détection des traceurs caractéristiques de la perte d'étanchéité : les produits de fission relâchés dans le caloporteur primaire au travers de la fuite. Cette dernière a démontré son efficacité mais présente néanmoins des limitations en termes de temps de réponse et de restriction dans les produits de fission pouvant être détectés. En effet, seuls les gaz rares de fission et les halogènes précurseurs de neutrons retardés sont actuellement suivis par les mesures réalisées sur le sodium ou sur le ciel de pile via l'instrumentation existante.

L'objet de ce travail de thèse réside dans l'étude de faisabilité d'une nouvelle instrumentation permettant d'apporter, au-delà d'une simple redondance avec l'instrumentation existante, une richesse supplémentaire en termes de produits de fission détectables et de rapidité de temps de réponse. Ce diagnostic enrichi sur l'état de la perte d'étanchéité serait alors une aide pour le poste de commande dans les actions à mener rapidement afin de gérer l'incident. La méthode de mesure étudiée est une spectrométrie gamma réalisée à l'aide d'un détecteur germanium hyper pur (HPGe) directement sur le sodium primaire. Le détecteur HPGe, réputé pour sa très bonne résolution en énergie, n'entraînerait aucune restriction quant aux produits de fission émetteurs gamma détectables. Une étude théorique par simulation Monte-Carlo est menée dans cette thèse, afin d'étudier la faisabilité d'une telle approche. Un obstacle majeur à cette mesure réside dans la très haute activité du sodium primaire, en raison de son activation par les neutrons provenant du cœur, rendant difficile l'utilisation d'une chaîne de spectrométrie conventionnelle. C'est pourquoi l'utilisation de la chaîne de spectrométrie gamma ADONIS, développée par le CEA LIST, est envisagée, afin de prendre en compte des taux de comptage allant au-delà de ceux



envisageables à l'aide de chaînes de spectrométrie conventionnelles. Cette chaîne de spectrométrie fait, dans ces travaux, l'objet d'une validation pour la problématique de détection de rupture de gaine, via son implantation sur la boucle d'irradiation de crayon combustible ISABELLE 1 du réacteur expérimental OSIRIS. Les essais menés visaient à suivre les potentielles ruptures de gaines lors de l'exploitation de la boucle.

Ce manuscrit est organisé autour de sept chapitres, le premier étant la présente introduction. Le second chapitre explicite les motivations de la réflexion autour d'une quatrième génération de réacteurs nucléaires et détaille les six concepts aujourd'hui à l'étude au sein du Forum International Génération IV. Une attention toute particulière est apportée à la filière sodium et au projet ASTRID, sur lesquels portent ces travaux de thèse. Le troisième chapitre est dédié à la problématique des ruptures de gaines. La phénoménologie de ces dernières est détaillée, des modifications intervenant au niveau du combustible jusqu'au rejet des produits de fission dans le sodium. L'instrumentation existante dédiée à la détection de rupture de gaine, notamment déployée sur Phénix et Superphénix, ainsi que le retour d'expérience associé, sont présentés. Le quatrième chapitre est consacré aux études théoriques menées par simulation Monte-Carlo, afin d'améliorer ou de renforcer l'instrumentation existante. Une étude d'optimisation du poste de mesure DND (*Delayed Neutron Detection*), dédié à la détection des produits de fission précurseurs de neutrons retardés, est présentée dans un premier temps. La faisabilité de la spectrométrie gamma sur le sodium primaire est ensuite étudiée via la modélisation d'un poste de mesure dédié et la simulation de la réponse spectrale du détecteur HPGe. Le cinquième chapitre présente les différents outils envisagés pour le déploiement de cette mesure de spectrométrie gamma. Les performances de la chaîne de spectrométrie gamma ADONIS et des outils développés pour la déconvolution de spectres riches en termes de pics sont comparées aux résultats offerts par les méthodes conventionnelles. Ces outils ont ensuite été déployés lors des différents essais sur la boucle ISABELLE 1 détaillés dans le sixième chapitre. Ce chapitre est dédié à la validation de la chaîne ADONIS pour le suivi de ruptures de gaine. Les caractéristiques du poste de mesure mis en œuvre sont exposées, puis les deux ruptures de gaines survenues durant les irradiations sont présentées et analysées. Le septième et dernier chapitre conclut ces travaux de thèse.

# 2 LES REACTEURS GENERATION IV, LE PROJET ASTRID ET L'INSTRUMENTATION NUCLEAIRE DEDIEE A LA FILIERE SODIUM

## 2.1. Introduction

Dans ce deuxième chapitre, les enjeux et défis auxquels l'énergie nucléaire sera confrontée dans les toutes prochaines années ainsi que les solutions envisagées notamment via le Forum International Génération IV (FIG) sont exposées. Ces solutions prennent la forme de six concepts de nouveaux réacteurs. Le principe de fonctionnement de ces six réacteurs est explicité avec une attention particulière apportée à la filière sodium. L'historique de cette filière à la fois au niveau mondial et français, le fonctionnement, les choix technologiques et les aspects sûreté sont successivement décrits. ASTRID, le projet de prototype industriel de réacteur à neutrons rapides refroidi au sodium liquide (RNR-Na) porté par la France et le CEA est ensuite exposé. Cette thèse se focalisant sur la détection de ruptures de gaines combustible dans les futurs RNR-Na tels qu'ASTRID, un état de l'art sur l'instrumentation nucléaire mise en place dans ce but dans la filière sodium est donc dressé avec pour principaux exemples les retours d'expériences

(REX) français des réacteurs PHENIX et SUPERPHENIX. Les limitations de cette instrumentation sont soulignées et l'opportunité d'un enrichissement de celle-ci avec une spectrométrie gamma hauts taux de comptage sur le sodium primaire est discutée.

## 2.2. Les réacteurs de quatrième génération [1]

### 2.2.1. Les défis de l'énergie nucléaire

A l'heure de la réduction du réchauffement climatique et de la raréfaction des énergies fossiles, l'énergie nucléaire avec les énergies renouvelables font figure de bonnes candidates pour assurer les besoins énergétiques futurs d'une population mondiale grandissante. S'il est clair que l'énergie nucléaire peut avoir une place prépondérante dans la production énergétique de demain, celle-ci reste confrontée à des défis qui lui sont propres. À l'horizon 2035, l'Agence Internationale de l'Énergie Atomique (AIEA) prévoit une augmentation de 7 à 82 % de la puissance nucléaire installée dans le monde, notamment dans les zones émergentes comme en Asie orientale (entre 65 et 150 %) [2]. Le marché de l'uranium pourrait connaître des tensions dès le milieu du siècle, voire une pénurie à la fin du XXI<sup>e</sup> siècle. La gestion des déchets de nos installations passées, actuelles et futures, la limitation des risques de prolifération ainsi que la volonté de s'inscrire dans une logique d'amélioration de la sûreté font également partie des défis à relever. C'est afin de répondre à ces problématiques que la quatrième génération de réacteurs nucléaires est actuellement à l'étude.

### 2.2.2. Le Forum International Génération IV (FIG)

Le FIG est une coopération internationale entre treize états fondée en 2000 sous l'impulsion du DOE (*US Department Of Energy*) dont l'objectif est de déterminer les programmes de recherche et de développement concernant les réacteurs nucléaires de la prochaine génération. L'objectif final consiste à déterminer la faisabilité et les performances des différentes solutions technologiques envisagées à l'heure actuelle. Afin de relever les défis précédemment mentionnés, ces réacteurs devront être durables en utilisant un combustible dont la pérennité est assurée (plus de 4000 giga tonnes équivalents pétrole contre 40 aujourd'hui) et en minimisant la production de déchets radioactifs pour lesquels un traitement durable sera possible. Ils devront également être fiables avec un cœur résistant à d'éventuels dommages. Leur viabilité économique devra être démontrée avec un coût inférieur aux autres sources d'énergies. Par ailleurs, les risques de non-prolifération devront être pris en compte. Le détournement de matériaux radioactifs à des fins militaires devra être rendu impossible, et cela durant tout le cycle du combustible. Les zones de stockage intermédiaires devront être supprimées. La Figure 2-1 présente l'évolution des différentes générations de réacteurs.

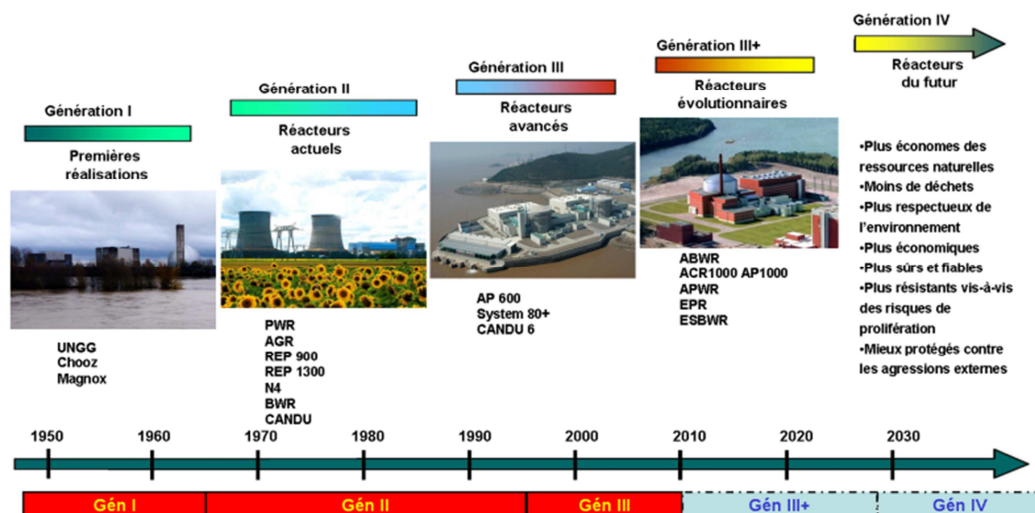


Figure 2-1 : Chronologie des différentes générations de réacteurs nucléaires

### 2.2.3. Les filières de la quatrième génération [3] [4]

Six projets de réacteurs ont été retenus par le FIG (Tableau 2-1).

System	Neutron spectrum	Coolant	Outlet Temperature °C	Fuel cycle	Size (MW <sub>e</sub> )
VHTR (Very-high-temperature reactor)	Thermal	Helium	900-1000	Open	250-300
SFR (Sodium-cooled fast reactor)	Fast	Sodium	500-550	Closed	50-150 300-1500 600-1500
SCWR (Supercritical-water-cooled reactor)	Thermal/fast	Water	510-625	Open/closed	300-700 1000-1500
GFR (Gas-cooled fast reactor)	Fast	Helium	850	Closed	1 200
LFR (Lead-cooled fast reactor)	Fast	Lead	480-570	Closed	20-180 300-1200 600-1000
MSR (Molten salt reactor)	Thermal/fast	Fluoride salts	700-800	Closed	1000

Tableau 2-1 : Vue d'ensemble des six filières envisagées pour la quatrième génération

#### 2.2.3.1. Le réacteur à très hautes températures (RTHT)

Le RTHT est le seul réacteur parmi les six du FIG à n'envisager un fonctionnement qu'en spectre thermique avec un cycle du combustible ouvert. Le combustible se présente sous la forme de noyaux de matière fissile de taille millimétrique (oxyde ou carbure d'uranium, de plutonium ou de thorium) enrobés de plusieurs couches (carbone poreux, carbone pyrolytique et carbure de silicium) apportant une grande résistance mécanique ainsi qu'une très bonne

étanchéité. Ces particules de combustible sont dispersées dans une matrice de graphite servant à la fois de modérateur et de réflecteur neutronique sous forme de « boulets » ou de « compacts ». Le caloporteur utilisé est l'hélium gazeux sous pression (50 à 90 bars). Celui-ci présente l'avantage d'être transparent aux neutrons et de ne pas réagir chimiquement avec les matériaux du réacteur. De plus l'utilisation d'un gaz permet d'atteindre une température de fonctionnement importante. Deux systèmes sont envisagés pour la production électrique, une turbine à hélium gazeux sur le circuit primaire ou l'utilisation d'un générateur de vapeur plus conventionnel couplé à un circuit secondaire eau/vapeur.

Ce réacteur de puissance restreinte (environ 300 MWe) au rendement proche de 45% est modulaire (construction facilitée sur site via la fabrication préalable de modules en usine). S'il n'apparaît pas le meilleur candidat comme réacteur électrogène pouvant remplacer les réacteurs de génération 3 et 3+, son principal intérêt est la cogénération pour la production de chaleur industrielle (industrie pétrochimique, métallurgique) et d'hydrogène par électrolyse à haute température puisque celle-ci avoisinerait les 1000 °C en sortie. D'un point de vue sûreté, le RTHT présente l'avantage de ne pas nécessiter de moyens de dissipation de puissance résiduelle actif puisqu'une perte du caloporteur entraînerait naturellement un étouffement de la réaction en chaîne grâce à un coefficient de contre-réaction en permanence négatif. La Figure 2-2 présente le principe du RTHT.

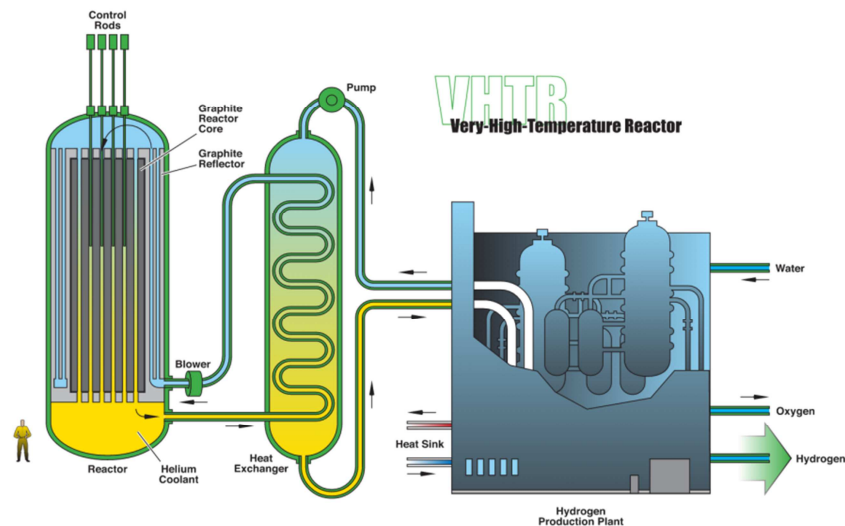


Figure 2-2 : Principe du RTHT

### 2.2.3.2. Le réacteur à eau supercritique (RES)

Le RES est l'unique filière retenue par le FIG utilisant l'eau comme caloporteur et l'une des deux pouvant utiliser un spectre thermique ou rapide. Ce réacteur peut être considéré comme une évolution des réacteurs de troisième génération et son principal atout est avant tout économique. En effet, si son fonctionnement apparaît très semblable à celui d'un réacteur à eau bouillante (REB), l'utilisation de l'eau à l'état supercritique (température et pression

respectivement supérieures à 374°C et 22,1 MPa) comme caloporteur et sa meilleure capacité thermique permet d'atteindre une température de sortie de 550°C portant ainsi le rendement à 45% contre 35% avec les réacteurs à eau légère de la génération actuelle. L'utilisation de l'eau supercritique permettrait également de résoudre les problèmes de changement de phase liquide/vapeur comme la crise d'ébullition nucléée pouvant être observée dans les réacteurs à eau sous pression (REP). Cependant des efforts sont encore nécessaires concernant la compréhension des phénomènes dans la zone pseudo-critique où des propriétés thermodynamiques singulières apparaissent en fonction du flux thermique dans le combustible et du débit massique. Le fonctionnement en spectre rapide est rendu possible par la diminution de la quantité d'eau circulant dans le cœur et par l'ajout d'assemblages fertiles au sein des assemblages fissiles. La Figure 2-3 présente le principe du RES.

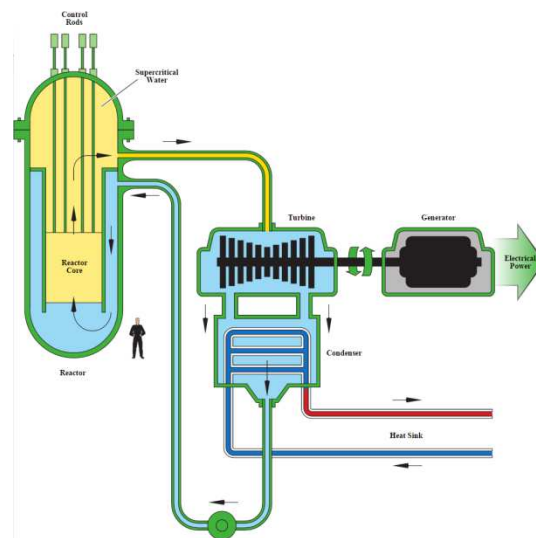


Figure 2-3 : Principe du RES

### 2.2.3.3. Le réacteur à sels fondus (RSF)

Le RSF est un réacteur dans lequel des sels fondus jouent le rôle de caloporteur. Deux familles de RSF se distinguent, la première possède un cœur où les particules de combustible type TRISO (billes millimétriques de matière fissile ou fertile enrobées de trois couches de pyrocarbone isotrope) sont regroupées en plaques contenues dans un assemblage tandis que la deuxième apparaît plus lointaine des autres systèmes retenus par le FIG avec un combustible liquide dissous dans le caloporteur à base de sels fondus. Cette dernière configuration apparaît privilégiée par le FIG. Si un fonctionnement en spectre thermique et rapide est possible, l'exploitation du spectre rapide d'un RSF est favorisée en vue d'une optimisation de l'utilisation du combustible et d'un fonctionnement en surgénérateur. Le caloporteur est composé de sels fluorés dans lequel est dissous la matière fissile (uranium 233) et fertile (thorium 232). Ce sel combustible circule dans seize boucles de recirculation avec un mélange du sel en amont et en aval de ces boucles. Les températures d'entrée et de sortie de boucles visées sont respectivement

de 700°C et 770°C. La puissance est évacuée via un circuit intermédiaire contenant un sel inerte, un circuit secondaire permet alors la conversion d'énergie avec un rendement global d'environ 43%. Le RSF est le seul réacteur rapide du FIG avec un coefficient de vide négatif, ce qui représente un atout majeur. De plus, la température d'ébullition du sel combustible élevée (1800°C) permet sa faible pressurisation (moins de 5 bars) et limite donc les contraintes mécaniques sur les structures. L'inventaire en matière fissile est inférieur aux autres filières et la répartition du combustible est plus homogène. Par son état liquide, la problématique d'endommagement de la matrice combustible par rayonnement est évitée. Néanmoins des difficultés demeurent :

- Une épuration du sel via une unité de traitement du combustible est nécessaire de manière quasi-continue afin de maintenir l'intégrité chimique et le potentiel redox de celui-ci.
- La toxicité des déchets issus de cette unité se pose.
- Les hautes températures et la faible inertie thermique du sel rendent indispensable un système de vidange dans des réservoirs dans lesquels le combustible sera maintenu sous critique sans quoi l'intégrité des structures pourrait pâtir d'une élévation rapide de température.

La robustesse d'un tel dispositif représente un élément de sûreté essentiel. De plus, comme pour la plupart des réacteurs retenus par le FIG, les hautes températures visées ainsi que les problèmes de corrosion induits nécessitent une attention toute particulière à la conception des structures mécaniques. La Figure 2-4 présente le principe du RSF.

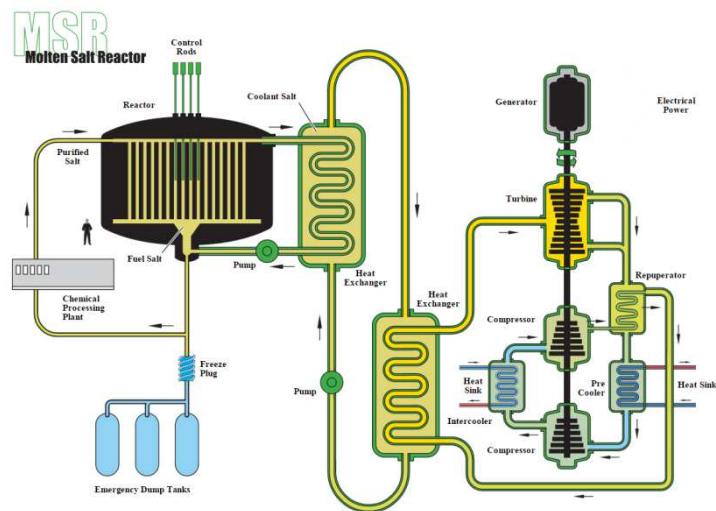


Figure 2-4 : Principe du RSF

#### 2.2.3.4. Le réacteur à neutrons rapides refroidi au gaz (RNR-G)

Le RNR-G est un des trois réacteurs de la filière rapide retenus par le FIG. Son fonctionnement en spectre rapide avec un cycle du combustible fermé en fait un bon candidat en termes d'optimisation des ressources en uranium et de limitation des déchets à vie longue. L'hélium pressurisé à 70 bars a été choisi comme caloporteur, l'utilisation d'un caloporteur gazeux permet d'envisager une température de fonctionnement de 850 °C en sortie de cœur permettant un rendement de 45%. Comme pour le RTHT, un important challenge concerne la R&D des matériaux pouvant être utilisés au regard des températures estimées, notamment pour les gaines combustible. Le RNR-G a pu bénéficier de la R&D menée lors de phases de conception et de réalisation d'ITER (*International Thermonuclear Experimental Reactor*). Des gaines en carbure de silicium sont envisagées. Des pastilles de carbure d'uranium et de plutonium sont retenues comme combustible. La cuve réacteur est contenue dans une cuve principale sous pression où l'hélium gazeux est maintenu à 400°C. Après passage dans le cœur, le transfert de chaleur entre primaire et secondaire a lieu via un échangeur intermédiaire de chaleur. Le circuit secondaire, constitué d'hélium et d'azote, décharge son énergie via une turbine à gaz, l'excédent d'énergie est alors récolté via un générateur de vapeur connecté à un circuit tertiaire. La grosse densité de puissance pour une faible inertie thermique du caloporteur et un coefficient du vide positif nécessitent un système de dissipation actif dont la R&D représente un enjeu de sûreté (conception d'une enceinte de sauvegarde pressurisée). La Figure 2-5 présente le principe du RNR-G.

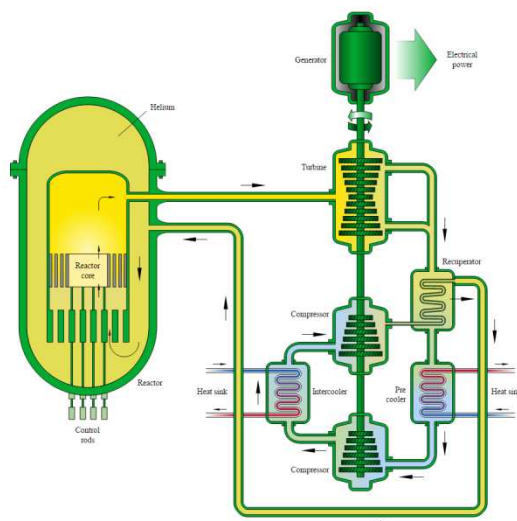


Figure 2-5 : Principe du RNR-G

#### 2.2.3.5. Le réacteur à neutrons rapides refroidi au plomb (RNR-Pb)

Le RNR-Pb est tout comme le RNR-Na et le RNR-G un réacteur à spectre rapide avec un cycle du combustible fermé favorisant l'optimisation du combustible et la surgénération. Le caloporteur peut être du plomb ou un mélange eutectique de plomb et de bismuth. Les



températures visées en entrée et en sortie de cœur sont respectivement de 400°C et 480°C. Ces caloporteurs ont pour avantage de ne pas réagir violemment avec l'eau et l'oxygène ce qui permet donc de ne pas envisager de circuit intermédiaire avec une architecture « intégrée ». Si le MOX est envisagé comme combustible, des combustibles carbure ((U,Pu)C) et nitrure ((U,Pu)N) sont également à l'étude. La cuve réacteur est contenue dans une cuve sécurité ancrée dans le béton du puits de cuve. Les deux caloporteurs envisagés sont très faiblement modérateurs et très bons réflecteurs neutroniques, la proportion de caloporteur utilisée est donc plus importante que dans un RNR-Na par exemple, ce qui facilite la convection naturelle. De plus, leur température d'ébullition très élevée (respectivement 1745°C et 1670°C) permet une moindre pressurisation et un risque d'évaporation du caloporteur très faible. Compte tenu du volume important de plomb et de sa masse volumique, sa grande inertie thermique est un avantage. Cependant, s'il n'y a pas de risque de réactions violentes avec l'oxygène et l'eau, l'augmentation de la viscosité du caloporteur peut entraîner une surchauffe de combustible. La formation de polonium 210 par activation du caloporteur pose également problème. De plus, au-delà de la masse de plomb pouvant potentiellement affecter les structures mécaniques, des études sont menées afin de dégager des matériaux permettant de résoudre les difficultés amenées par le pouvoir corrosif du plomb. Cette filière bénéficie du retour d'expérience des sous-marins russes classe Alfa au plomb et bismuth développés dans les années 70. La Figure 2-6 présente le principe du RNR-Pb.

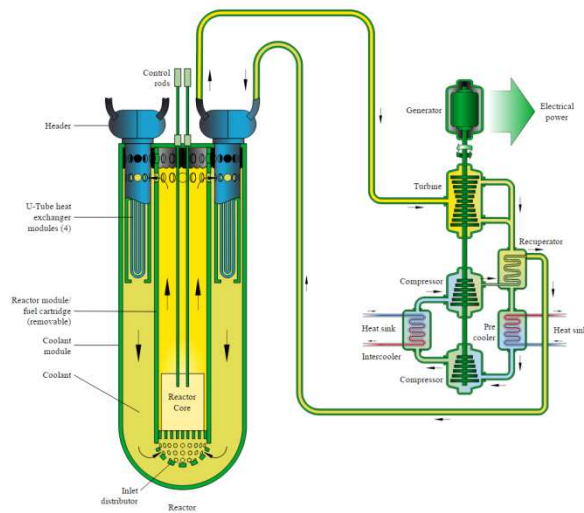


Figure 2-6 : Principe du RNR-Pb

Le RNR-Na, réacteur sur lequel porte les travaux de cette thèse, sera développé de manière plus approfondie dans la section 2.4 sur la filière sodium.

### 2.2.3.6. Maturité des projets [5][6]

Les filières sodium et plomb apparaissent comme les plus matures. La France apparaît comme leader sur la filière sodium grâce au projet ASTRID et à son REX important en raison de la conception, de la fabrication et de l'exploitation de PHENIX et SUPERPHENIX. La filière plomb bénéficie du REX important de la Russie provenant de leurs réacteurs au plomb pour la propulsion sous-marine. L'Italie travaille également sur cette technologie avec le projet de RNR-Pb ALFRED en collaboration étroite avec la Belgique. La filière RNR-G bénéficie des travaux menés par le centre V4G4 créé par la Hongrie, la Pologne, la République tchèque et la Slovaquie en vue de construire le démonstrateur «Allegro». Ces travaux sont soutenus par l'expérience du CEA dans cette filière. La filière à sels fondus bénéficie de recherches universitaires (CNRS en France). La filière à eau supercritique est principalement développée au Canada. Concernant la filière à très hautes températures, les recherches se concentrent sur la possibilité d'atteindre des températures en sortie de cœur proches de 1000°C.

La Figure 2-7 et Figure 2-8 résument respectivement l'investissement des différents états membres du GIF dans les six projets au 1<sup>er</sup> janvier 2014 ainsi que leur avancement prévisionnel.

System	CA	CN	EU	FR	JP	KR	RU	CH	US	ZA
SFR		✓	✓	✓	✓	✓	✓		✓	
VHTR		✓		✓		✓		✓	✓	
SCWR	✓		✓		✓		✓			
GFR			✓	✓	✓			✓		
LFR			P		P		P			
MSR			P	P			P			

✓ = Signatory to the System Arrangement; P = signatory to the Memorandum of Understanding; Argentina, Brazil, and the United Kingdom are inactive.

Figure 2-7 : Investissement des membres dans les différents projets [6]

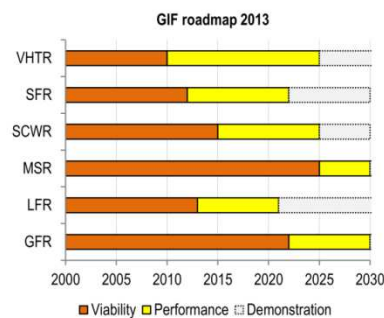


Figure 2-8 : Avancements prévisionnels des différents projets [6]

## 2.2.4. La filière sodium [7]–[10]

### 2.2.4.1. Historique de la filière sodium [11]

#### 2.2.4.1.1. La filière sodium dans le monde

Le 20 décembre 1951, la première électricité produite à partir d'un réacteur nucléaire est issue d'un RNR-Na grâce au prototype EBR1 (Idaho, Etats Unis) utilisant un alliage de sodium et de

potassium (NaK) comme caloporteur. La robustesse de la neutronique, les hautes températures accessibles, l'absence de pressurisation et la possibilité de surgénération rendent cette technologie très attractive aux yeux de grandes puissances comme l'Union Soviétique, les Etats-Unis et l'Angleterre qui se lancent dans la construction de réacteurs expérimentaux dès la fin des années 50. Ces phases expérimentales ont permis de statuer sur certaines options technologiques comme par exemple l'abandon du NaK au profit du sodium en raison de ses bonnes propriétés physiques pour le transfert et le transport de chaleur, son faible pouvoir corrosif, une faible activation sous flux neutronique, un coût peu élevé et son abondance. Ces essais ont également permis de démontrer la faisabilité des réacteurs de puissance. Dans les décennies qui suivirent, en dépit de solutions technologiques avancées (projets BN 600 en Russie, PHENIX et SUPERPHENIX en France), le développement de cette filière de réacteurs a été fortement ralenti notamment en raison de la question de compétitivité face aux réacteurs à eau sous pression qui ont grandement profité des développements des réacteurs embarqués de la marine aux Etats-Unis. De plus, les décisions politiques relatives au risque de prolifération ont freiné le développement de la filière et les accidents de Three Mile Island (1979) et Tchernobyl (1986) ont également ralenti l'activité nucléaire dans son ensemble. Les Tableau 2-2, Tableau 2-3 et Tableau 2-4 récapitulent l'état des différents projets de RNR-Na [12]. Récemment, cette technologie fait l'objet d'un regain d'intérêt en raison notamment des craintes envers la pérennité des ressources en uranium. La filière sodium apparaît comme la plus mature pour incarner la future génération de réacteurs en raison du retour d'expérience très important acquis durant les dernières décennies.

Installation	Pays	Ingénierie	Puissance MW th/MW e	Réfrigérant	Etat actuel
CEFR	Chine	CIAE Beijing Institute of Nuclear Energy	65/25	sodium	En marche
RAPSODIE	France	GAAA (0)	40/0	sodium	Arrêté (1983)
KNK- II	Allemagne	Interatom	58/20	Sodium	Arrêté (1991)
FBTR	Inde	IGCAR (1)	40/13	Sodium	En marche
PEC	Italie	Ansaldo/NIRA/ENEA	120/0	Sodium	Jamais démarré
JOYO	Japon	JNC (2)	140/0	Sodium	Arrêt temporaire
BR-5/BR-10	Russie	Ministry for Atomic Energy	8/0	Sodium	Arrêté (2002)
BOR-60	Russie	Hydrogen Design Bureau Podolsk	55/12	Sodium	En marche
DFR	UK	UK AEA	60/15	Sodium	Arrêté (1977)
CLEMENTINE	USA	GE	0.02	Mercure	arrêté
LAMPRE	USA	Los Alamos NL	1	sodium	arrêté
SEFOR	USA	GE	20	Sodium	Arrêté (1972)
EBR-I	USA	Argonne NL	1.4	Sodium/ potassium	Arrêté (1963)
EBR-II	USA	Argonne NL	62.5/20	Sodium	Arrêté (1991)
FFTF	USA	Westinghouse	40/0	sodium	Arrêté (1993)

**Tableau 2-2 : RNR-Na expérimentaux (ordre alphabétique des pays) [12]**

Installation	Pays	Ingénierie	Puissance MW th/MW e	Réfrigérant	Etat
PHENIX	France Marcoule	CEA EDF GAAA	563/250	Sodium	Arrêté (2009)
SNR-300	Allemagne	INB (1)	762	sodium	Construction arrêtée
MONJU	Japon	PNC (3)	714/280	sodium	Arrêt temporaire
BN-350	Kazakhstan	MBDB (4)	750/135+dessalement	sodium	Arrêté (1999)
BN-600	Russie	idem	1470/600	Sodium	En marche
PFR	UK	NNC (5)	650/250	Sodium	Arrêté (1994)
CRBRP	USA	Westinghouse	975	Sodium	Construction stoppée
EFFBR	USA	APDA (6)	200	Sodium	Arrêté (1972)

**Tableau 2-3 : RNR-Na prototypes ou de démonstration [12]**

Installation	Pays	Ingénierie	Puissance MWth/MWe	Réfrigérant	Etat
EFR	Union Européenne	Consortium Européen	3600	Sodium	Projet abandonné
SUPERPHENIX	France	Nersa Consortium	3000/1200	Sodium	Arrêté (1997)
SNR-2	Allemagne	EDF ENEL RWE	3420	Sodium	Projet abandonné
DFBR	Japon	JAPC ,PNC, JAERI & CRIEPI	1600	Sodium	Projet abandonné
PFBR	Inde	IGCAR (2)	1250/500	sodium	En construction
BN 800	Russie	Afrikantov OKB Mechanical Engineering	2100/800	Sodium	A divergé en juin 2014

**Tableau 2-4 : RNR-Na de puissance [12]**

#### 2.2.4.1.2. *La filière sodium en France*

##### 2.2.4.1.2.1. *RAPSODIE*

L'intérêt que porte la France à la surgénération l'amène à construire son propre réacteur RNR-Na expérimental. Les travaux de RAPSODIE commenceront en 1962 pour une première divergence le 28 janvier 1967. RAPSODIE est un réacteur intégrant deux boucles primaires chacune couplée à une boucle secondaire. Un échangeur sodium/air permet la dissipation d'énergie, le réacteur ne produit donc pas d'électricité. Initialement d'une puissance de 20 MWth, celle-ci sera augmentée à 40 MWth en 1970 via les modifications FORTISSIMO [13]. Des incidents sur la double paroi du circuit primaire à partir de 1978 aboutiront à un abaissement de la puissance à 22,4 MWth en 1980. Les réparations coûteuses ainsi que la disponibilité de PHENIX démarré en 1973 entraîneront la fermeture de RAPSODIE. Très rapidement, RAPSODIE aura permis d'obtenir un retour d'expérience conséquent sur les matériaux et le combustible, résultats qui seront capitaux pour la planification de PHENIX.

#### 2.2.4.1.2.2. PHENIX

Suite à RAPSODIE est construit dès 1968 PHENIX, un RNR-Na expérimental de 580 MWth qui divergera pour la première fois en 1973. De type intégré, PHENIX est composé de trois boucles secondaires, chacune couplée à un générateur de vapeur permettant à une turbine de produire de l'électricité. La conception de PHENIX sera fortement guidée par les retours d'expérience encourageants de RAPSODIE. L'objectif de PHENIX est de conforter les options pour le prototype de puissance SUPERPHENIX, déjà à l'étude, notamment concernant les gaines combustibles. De plus, 75% du plutonium des assemblages retraités sera recyclé afin d'être brûlé dans le réacteur ce qui valide le recyclage du plutonium en grande quantité (3,3 tonnes). Il est également montré que la dosimétrie est bien inférieure sur PHENIX que sur les réacteurs à eau. PHENIX s'arrêtera de fonctionner en 1990 pour une phase d'inspections suite à des arrêts d'urgence par réactivité négative jusqu'en 1993. Suivra une importante phase de rénovation de 1994 à 2002 qui aboutira sur un redémarrage de l'installation en 2003 avec les 2/3 de la puissance initiale disponible. PHENIX sera fermé en 2009 36 ans après son démarrage. La Figure 2-9 illustre la hotte de manutention des gros composants de PHENIX.



**Figure 2-9 : Hotte de manutention des gros composants de PHENIX**

#### 2.2.4.1.2.3. SUPERPHENIX

Les réflexions autour de SUPERPHENIX, un prototype de RNR-Na de puissance de 3000 MWth, débutent peu de temps après la divergence de PHENIX. En 1974, la France, l'Italie ainsi que l'Allemagne s'associent via leur compagnie respective EDF (51%), ENEL (33%) et RWE (16%) pour former la société NERSA qui sera en charge de la construction et de l'exploitation de SUPERPHENIX. La construction du réacteur s'étendra de 1976 à 1983 pour une première divergence en 1985. Durant toute cette période, SUPERPHENIX bénéficiera de l'intégralité du retour d'expérience de PHENIX. A partir de 1986, on voit apparaître de très fortes contestations et pressions politiques contre l'exploitation de SUPERPHENIX. Cela aura pour conséquences de bloquer administrativement l'exploitation de SUPERPHENIX pendant cinq ans, alors que le

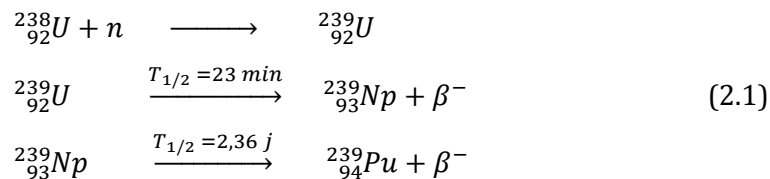
réacteur était opérationnel. En 1997, SUPERPHENIX est arrêté pour des raisons économiques et politiques. La Figure 2-10 représente une vue aérienne de SUPERPHENIX.



**Figure 2-10 : SUPERPHENIX vu d'avion**

#### 2.2.4.2. Généralités

La filière RNR-Na, comme la majorité des autres concepts retenus par le FIG utilise un spectre rapide (énergies des neutrons majoritairement comprises entre 100 keV et 1 MeV) permettant l'optimisation des ressources en uranium ainsi que le recyclage des actinides mineurs. Dans le cas des RNR-Na utilisant le cycle combustible U/Pu, les captures neutroniques de l'uranium 238 fertile abondant sur Terre permettent la production du plutonium 239 fissile (voir (2.1)). L'énergie est alors produite par la fission du plutonium 239, celle-ci s'accompagne de deux produits de fission et de 2,4 neutrons. Pour chaque neutron absorbé, la production de 2,3 neutrons est nécessaire afin d'entretenir la réaction de fission. Un neutron est nécessaire pour compenser celui absorbé par le plutonium 239, un second pour assurer la transmutation de l'uranium 238 et 0,3 pour pallier les pertes liées aux captures stériles et aux fuites hors du cœur. La fission du plutonium 239 remplit cette condition.



De plus, via un agencement adéquat entre matière fissile et fertile au sein du cœur, il est possible d'obtenir des taux de régénération positifs synonymes d'une production de plutonium 239 pour chaque fission du cœur, ce qui correspond au principe de régénération du combustible. Le contrôle de ce taux de surgénération ainsi que le retraitement du combustible en aval au sein d'un cycle fermé permet alors de limiter au maximum les risques de prolifération à des fins militaires. Les RNR sont également une réponse à la gestion des déchets ultimes à vie longue et haute activité (HAVL) les plus radiotoxiques à long terme que sont les actinides mineurs américium, neptunium et curium. Après extraction de ces éléments du combustible usagé, ceux-ci peuvent être mélangés au combustible au sein de nouveaux assemblages. Placés dans le flux

rapide, la fission de ces actinides mineurs engendre des produits de fission dont la période est beaucoup plus courte. La radiotoxicité à long terme est alors largement diminuée.

Le combustible utilisé est de type MOX ((U,Pu)O<sub>2</sub>) mais des carbures ou des nitrures sont également à l'étude [14]. Les pastilles de ce combustible fissile sont empilées dans une gaine en acier austénitique formant une aiguille combustible. Les différentes aiguilles, séparées par des fils d'acier ou des grilles sont disposées dans des tubes hexagonaux d'acier austénitique formant ainsi les assemblages. Ceux contenant les pastilles fertiles (oxyde d'uranium appauvri) sont disposés en périphérie du cœur afin des capturer les neutrons issus de la partie centrale. Dans certaines configurations, des couches axiales de matière fertile sont incorporées dans les parties supérieures et inférieures des aiguilles fissiles.

Le sodium liquide est utilisé comme caloporteur. Il présente l'avantage de ne pas thermaliser les neutrons issus du spectre rapide et d'être un très bon caloporteur permettant de fonctionner avec des densités de puissance jusqu'à dix fois supérieures à celles permises par l'eau. De plus, la température en sortie de cœur visée étant de 550°C pour une température d'ébullition de 900°C, son utilisation ne nécessite pas de pressurisation du circuit primaire. Le sodium à haut niveau de pureté est également très peu corrosif pour les structures, c'est pourquoi il est filtré en permanence. La Figure 2-11 présente le principe du RNR-Na.

#### 2.2.4.3. Choix technologiques

On distingue deux types d'architectures pour les RNR-Na :

- L'architecture intégrée où le circuit primaire ainsi que tous les éléments associés (pompes, échangeurs intermédiaires) sont intégrés dans la cuve réacteur remplie de sodium. Le sodium chaud et le sodium froid sont séparés par une cuve interne à la cuve réacteur, la circulation du sodium est assurée par des pompes. Cette architecture a été implémentée dans PHENIX et SUPERPHENIX notamment et a été retenue pour le futur réacteur ASTRID.
- L'architecture à boucle où une ou plusieurs boucles primaires permettent de déporter les pompes et les échangeurs intermédiaires. Cette architecture a été implémentée dans RAPSODIE.

La cuve principale est suspendue à la dalle du réacteur sur laquelle on retrouve tous les dispositifs liés à la manutention du combustible, aux barres de contrôle, à l'instrumentation. La manutention des échangeurs intermédiaires ainsi que des pompes est également réalisée via cette dalle dans le cas des réacteurs de type « intégré ». Ces pompes permettent d'assurer la circulation du sodium au sein de la cuve en refoulant le sodium froid (400°C) dans le fond de la cuve afin d'alimenter le pied des assemblages. Les circuits secondaires sont au nombre de deux ou plus et utilisent également le sodium comme fluide. Via des pompes, ils permettent le

transport de la puissance de l'échangeur intermédiaire vers les générateurs de vapeur. La production électrique est assurée via une turbine. Afin de ne pas activer le sodium des circuits secondaires, des protections sont installées en périphérie du cœur. En plus des deux circuits principaux, un certain nombre de circuits auxiliaires sont également présents afin d'assurer des fonctions de stockage, de transfert ou d'épuration.

Concernant l'instrumentation du réacteur, celle-ci se focalise sur la surveillance de quatre points majeurs : la détection et la localisation des ruptures de gaines combustible qui sera abordée plus en détails dans la section 3.2, la mesure et le suivi de la puissance neutronique, de la température des structures ainsi que des vibrations.

#### 2.2.4.4. Sûreté

La sûreté du réacteur fait bien évidemment l'objet d'une attention toute particulière avec la mise en place de dispositifs permettant de répondre à trois grandes problématiques.

- Les réactions avec le sodium : le sodium est un métal alcalin qui réagit violemment avec l'air et l'eau engendrant un risque de feu de sodium et d'explosion. L'étanchéité des divers circuits contenant le sodium est donc renforcée et fortement surveillée. Des gaz ne réagissant pas avec le sodium comme l'argon et l'azote sont privilégiés.
- La maîtrise de la réactivité : contrairement aux réacteurs à eau, une perte ou une évaporation du caloporteur est synonyme d'augmentation de réactivité (coefficient de vide positif). Une compaction de la matière fissile est également à exclure. Des circuits de sécurité comprenant mesures neutroniques et thermodynamiques sont implémentés de manière indépendante et redondante. Ces circuits de sécurités ont une action directe sur les barres de contrôle.
- L'évacuation de la puissance résiduelle : des moteurs auxiliaires sont prévus pour assurer le fonctionnement des pompes primaires en cas de dysfonctionnement de leur alimentation principale, afin d'assurer un refroidissement permanent. Si ces pompes étaient amenées à ne plus être opérationnelles, la convection naturelle qui se mettrait en place permettrait d'assurer un refroidissement suffisant grâce notamment à l'importante masse de sodium qui permet de bénéficier d'une très bonne inertie thermique.



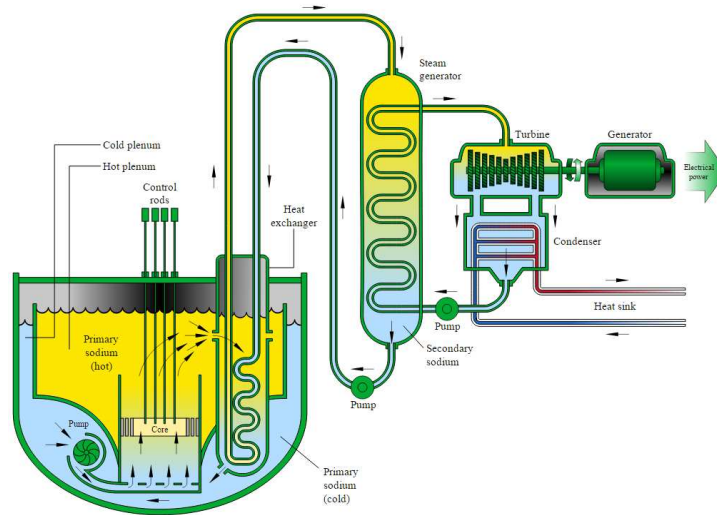


Figure 2-11 : Principe du RNR-Na

### 2.2.5. ASTRID [15]–[17]

#### 2.2.5.1 Généralités

Dans le contexte des travaux de R&D sur la quatrième génération de réacteurs initiés par le FIG dont la France est un acteur majeur, l'état français a confié au CEA lors de la Convention du 9 septembre 2010 l'élaboration d'un avant-projet détaillé d'un prototype industriel de RNR-Na : le projet ASTRID. Ce projet, né du regain d'intérêt pour la filière rapide pour les raisons précédemment citées et de l'important retour d'expérience dont dispose la France dans la filière sodium, a pour objectif de démontrer via l'intégration de technologies innovantes la rentabilité et la sûreté d'un RNR-Na à échelle industrielle ainsi que la faisabilité de tout le cycle combustible qui doit y être associé. Pour cela, le REX français provenant principalement de PHENIX mais également mondial est étudié afin de mettre en place des programmes R&D dans le but de pallier les principales faiblesses identifiées. Ceux-ci se focalisent sur une amélioration de la sûreté et de la disponibilité du réacteur à travers des études portant sur les points suivants.

- La réactivité du cœur
- Les réactions sodium-eau
- Les réactions sodium-air
- Les accidents graves
- L'évacuation de puissance résiduelle
- L'inspection, la surveillance et la réparation

La puissance du réacteur a été définie à 600 MWe, celle-ci résulte d'un compromis entre un réacteur suffisamment puissant afin de permettre une extrapolation à un réacteur industriel de

puissance comprise entre 1000 et 1500 MWe sans modification de la démonstration de sûreté et le besoin de flexibilité afin de pouvoir implémenter des technologies innovantes. Le coût financier est également un paramètre pour le dimensionnement du réacteur. Concernant les exigences, ASTRID devra permettre d'atteindre un niveau de sûreté au moins équivalent à celui des réacteurs conçus dans les années 2020. La viabilité du cycle fermé comprenant l'atelier de conception du combustible, de recyclage ainsi que de transmutation devra être démontrée. Le projet ASTRID présente également un intérêt expérimental puisqu'il devra rendre possible des campagnes d'irradiations afin de tester des solutions innovantes concernant la sûreté et la disponibilité du réacteur, d'étudier des matériaux et combustibles innovants et de valider les codes de calculs. Cet aspect est d'autant plus important qu'il n'existe plus d'autres RNR en fonctionnement en Europe. La disponibilité visée pour les réacteurs de quatrième génération est de 90% (environ 80% pour le parc électronucléaire français actuel). Sachant qu'ASTRID est également prévu comme support à des programmes expérimentaux, la disponibilité envisagée pour ce réacteur est de 80%. Concernant la durée d'exploitation, cette dernière est évaluée à 40 ans avec possibilité d'extension en fonction du REX de l'exploitation. Les réacteurs industriels de quatrième génération devant à terme assurer le suivi et la régulation du réseau électrique, les réglages de fréquence et de tension du réseau seront donc également implémentés dans ASTRID. Concernant l'aspect économique, le réacteur dont la construction est aujourd'hui estimée à environ 5 milliards d'euros [18] (dont une enveloppe de 650 millions d'euros débloquée dans le cadre du grand emprunt de 2010 pour financer les études de conception) devra permettre de prévoir le coût d'un parc nucléaire mêlant troisième et quatrième génération et de vérifier la compétitivité d'une telle production électrique.

#### 2.2.5.2 Cœur et combustible

Le matériau combustible retenu est de type oxyde mixte  $(U,Pu)O_2$ . Ce combustible bénéficie en effet d'un retour d'expérience important provenant notamment de PHENIX et SUPERPHENIX. Le matériau de gainage envisagé pour ASTRID est de type acier ferritique ou martensitique. Ces deux types de gainage permettent d'envisager de faibles gonflements même à des taux de combustion élevés. Néanmoins, ces derniers nécessitent encore de nombreuses qualifications et ne seront pas utilisés dans les premiers cœurs d'ASTRID. Le gainage envisagé pour ces derniers est de type 15-15 Ti écroui AIM1, celui-ci bénéficiant d'une R&D plus conséquente. Le diamètre externe des aiguilles combustible sera d'environ 9,5 mm (contre 8,5 mm pour SUPERPHENIX) et le diamètre des fils hélicoïdaux assurant l'espacement des aiguilles sera réduit à 1 mm. Ces choix sont motivés par la volonté de réduire les quantités de sodium dans le réseau d'aiguilles pour des questions de sûreté. Le concept de combustible hétérogène (alternance de zones fertiles  $UO_2$  et de zones fissiles  $(U,Pu)O_2$ ) est également retenu.

Le design du cœur d'ASTRID est principalement guidé par des objectifs de sûreté. Le concept de cœur CFV (Cœur Faible Vidange) a été retenu. Le design de ce cœur lui permet d'avoir un coefficient de vide légèrement négatif favorable à la perte de réactivité en cas de perte du débit de sodium. Ainsi, le comportement naturel d'un tel cœur apparaît plus sûr en cas de remontée intempestive de barre que celui des cœurs conçus par le passé comme celui de SUPERPHENIX. Ce comportement intrinsèque joue un rôle central dans le niveau de prévention souhaité, ce qui représente une rupture avec SUPERPHENIX et une avancée majeure sur le plan de la sûreté. Néanmoins, cette avancée en terme de sûreté nécessite une puissance volumique plus faible qui se traduit par un inventaire en plutonium plus important de 30% et une augmentation du diamètre du cœur et donc du réacteur. Ce cœur est composé de 18 barres de commande pour son pilotage. Un récupérateur de corium est également prévu au fond de la cuve pour retenir et refroidir ce dernier en cas de fusion du combustible et des tubes traversant sont prévus pour faciliter son écoulement jusque celui-ci. La Figure 2-12 illustre le cœur CFV d'ASTRID dans sa version V3.

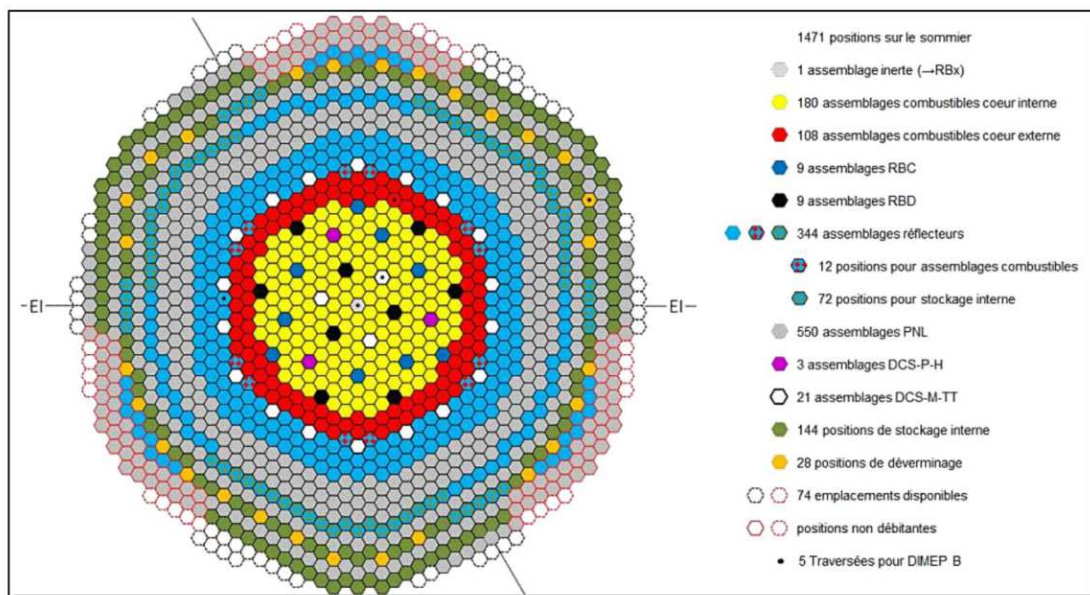


Figure 2-12 : Coeur CFV dans sa version V3 [14]

### 2.2.5.3 Inspection et surveillance

La notion d'inspection en service est également renforcée comparé aux anciens RNR-Na. Cet aspect a été par le passé considéré comme un point faible de la filière en raison de l'opacité et de la réactivité du sodium. Un effort important est porté sur ce point dès la conception notamment en limitant au maximum les soudures, en facilitant les accès pour maximiser les zones inspectables et démontrant l'absence de danger suite à une défaillance dans une zone non inspectable. Cette surveillance repose sur une instrumentation très diverse plus amplement décrite dans la section 2.3.

### 2.2.5.4 Organisation du projet

Si le projet est porté par le CEA, de nombreux industriels sont également impliqués via des collaborations bilatérales dans lesquelles ceux-ci financent sur fonds propres une partie des travaux engagés. La Figure 2-13 résume ces collaborations. Au-delà des collaborations industrielles, c'est au sein de collaborations internationales que sont entrepris les programmes de R&D. Le projet ASTRID fait ainsi pleinement parti du plan européen pour la transition énergétique bas carbone, via la réalisation de nombreux projets dédiés à la R&D. Au plan mondial, en plus de l'investissement français au sein du FIG et de l'AIEA, des partenariats bilatéraux ont été créés avec le Japon, l'Inde, la Russie, la Chine et les Etats-Unis pour entreprendre conjointement des actions de R&D. Concernant le planning d'ASTRID, l'avant-projet est constitué de plusieurs phases, celles-ci sont détaillées sur la Figure 2-14.

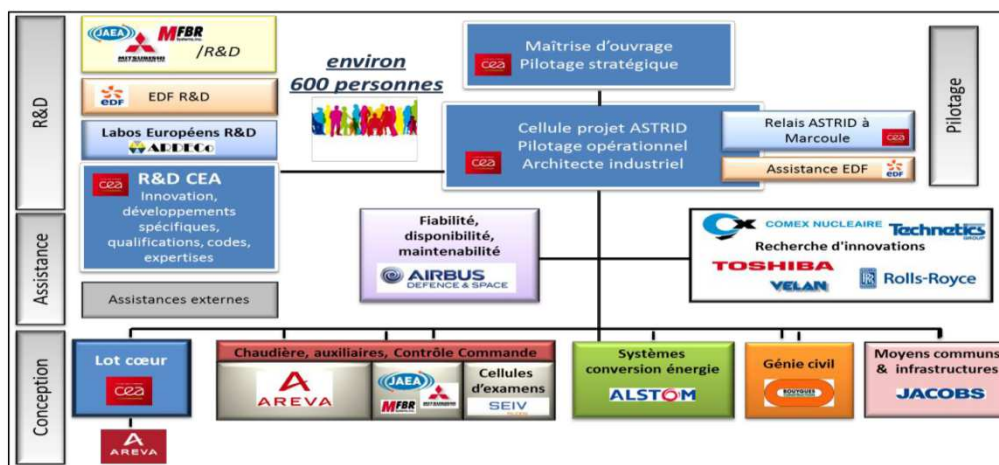


Figure 2-13 : Organisation générale du projet ASTRID [14]

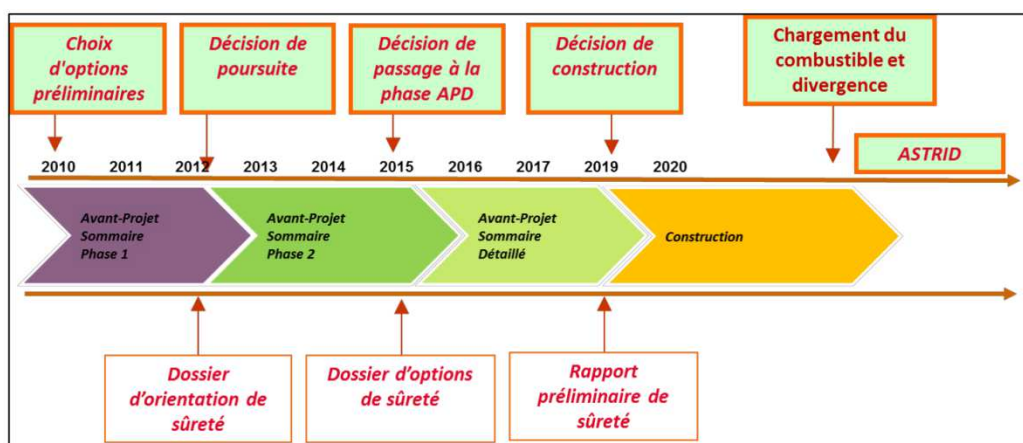


Figure 2-14 : Planning global du projet ASTRID [14]

## 2.3. L'instrumentation pour ASTRID

### 2.3.1. Généralités

L'instrumentation du réacteur représente un axe fort des programmes de R&D d'ASTRID. De nombreux instruments de mesure seront installés afin d'assurer des fonctions de contrôle et de sûreté. Cette instrumentation est très diverse et comprend notamment :

- les mesures de pression et de température du sodium aussi bien au niveau du cœur que des divers circuits. Ces mesures au niveau des assemblages sont essentielles notamment afin de prévenir un éventuel bouchage d'assemblage.
- les mesures de températures des structures afin de surveiller certaines parois notamment dans le sodium.
- le contrôle des vibrations qui permet d'avoir une connaissance des différentes contraintes que subissent l'ensemble des structures et d'évaluer ainsi le vieillissement accéléré induit sur les structures.
- les mesures acoustiques qui permettent un examen de l'intégrité des différentes structures internes de la cuve, l'opacité du sodium rendant difficiles les mesures optiques.
- les mesures de relâchement d'hydrogène afin de suivre le déclenchement et l'évolution d'éventuels feux de sodium.
- le contrôle de puissance neutronique qui permet un pilotage du réacteur : cette puissance est mesurée via une série de détecteurs placés dans les protections neutroniques autour du cœur ou sous la cuve afin de pouvoir couvrir toute la gamme de puissance du réacteur.
- la détection et la localisation des ruptures de gaines via la détection des produits de fission relâchés lors de la perte d'étanchéité d'une aiguille combustible. Cette instrumentation permet d'anticiper une éventuelle aggravation de l'état des aiguilles combustible. Elle est l'objet de cette thèse et sera plus amplement discutée dans les chapitres suivants.

Un important REX est disponible concernant ces diverses instrumentations notamment via PHENIX concernant les RNRs français. Ce REX sera mis à profit dans la conception de l'instrumentation d'ASTRID avec des exigences accrues pour encore réduire la probabilité d'occurrence d'accidents graves. Afin d'atteindre cet objectif, une diversification et une redondance des systèmes de mesure plus importantes sont envisagées. Suite à l'accident nucléaire de Fukushima, des études ont été lancées, afin d'améliorer la résistance à l'accident de

l'instrumentation actuelle. Des développements en lien avec la mise au point d'une instrumentation post-accidentelle ont également été initiés. L'instrumentation éprouvée ayant été développée il y a plus de trente ans, des évolutions technologiques sont de plus à implémenter.

## 2.3.2. La détection de ruptures de gaines (DRG)

### 2.3.2.1. Notion de cœur propre

Afin d'assurer la sûreté du réacteur en garantissant notamment le confinement des rejets radioactifs, le concept de défense en profondeur est ici mis en avant. Celui-ci consiste à garantir l'intégrité des trois barrières de confinement que sont la gaine combustible, le circuit primaire et l'enceinte du réacteur. Si une certaine pollution du circuit primaire est tolérée dans les réacteurs de deuxième et troisième génération, il a été choisi d'exclure cette possibilité dans le cas des RNR-Na pour favoriser un fonctionnement en cœur propre. L'intégrité de la première barrière de confinement qu'est la gaine combustible représente donc un enjeu majeur. Celle-ci se justifie par une réaction oxyde combustible-sodium (ROS) formant un composé de densité inférieure à celle du combustible, l'uranoplutonate de sodium, engendrant des contraintes sur la gaine combustible liées à une expansion volumique ainsi qu'une élévation locale de température. La ROS est donc synonyme d'une très probable aggravation de la rupture de gaine pouvant mener à un rejet de matière combustible dans le circuit primaire, à un accident de refroidissement puis à une fusion partielle du combustible. Le maintien de l'intégrité de la gaine combustible est essentiel et c'est donc sur cette notion de cœur propre que repose toute la stratégie de DRG.

### 2.3.2.2. Etat de l'art

#### 2.3.2.2.1. Principe de détection

La DRG doit permettre à l'opérateur de suivre l'évolution de la rupture dans ses différentes phases via une instrumentation appropriée à chacune de celles-ci afin de prendre les décisions appropriées le plus tôt possible. Elle permet également le déclenchement d'actions de sécurité suite à un dépassement de seuils. La Figure 2-15 indique les différentes phases de l'évolution d'une rupture de gaine.

- $t_1 \rightarrow t_2$  : rupture gaz, apparition des premiers gaz de fission (Xe, Kr) auparavant retenus dans les vases d'expansion de l'aiguille combustible, leur suivi est assuré à partir de prélèvement dans le ciel de pile et dans le sodium primaire
- $t_2 \rightarrow t_3$  : rupture ouverte, apparition des premiers produits de fission volatiles (Cs, I, Br, Rb). Le suivi de certains d'entre eux est assuré par détection de neutrons différés via prélèvement de sodium primaire.

- $t_3 \rightarrow t_{3'}$  : rupture critique suite au dépassement du seuil d'Arrêt d'Urgence (A.U.), au-delà la perte de matière combustible dans le primaire n'est plus exclue. Le réacteur est arrêté pour respecter le concept de cœur propre.

Les différentes ruptures de gaine peuvent trouver des origines diverses, on distinguera :

- les ruptures de fabrication, se caractérisant par un défaut d'étanchéité au niveau des soudures des vases d'expansion. L'intervalle de temps  $t_1-t_2$  est généralement long pour ce type de rupture, de l'ordre de plusieurs heures, laissant ainsi une marge de manœuvre plus importante à l'opérateur concernant le déchargement de l'assemblage.
- les ruptures de fin de vie, caractérisées par une ouverture de la gaine au niveau de la colonne fissile liée à des contraintes trop importantes (gonflement du combustible). Ces ruptures se produisent lorsque le taux de combustion est élevé ( $> 15\%$  FIMA). L'intervalle de temps  $t_1-t_2$  est court, de l'ordre de quelques minutes, et demande donc une plus grande réactivité [19].
- les ruptures accidentelles, provoquées par un défaut de refroidissement et/ou une insertion de réactivité. L'intervalle de temps  $t_1-t_2$  est court.

Après identification et qualification de la rupture de gaine, une localisation permet d'identifier l'élément combustible devant faire l'objet d'une intervention. Celle-ci s'effectue via prélèvement du sodium au-dessus des assemblages et doit s'effectuer le plus rapidement possible avant arrêt du réacteur. Dans le cas où cette localisation n'est pas possible avant arrêt du réacteur, un redémarrage avec montée en puissance progressive afin d'effectuer cette localisation est prévu après avoir écarté le risque d'accident [20]. Dans le but de juger de la criticité de la rupture de gaine, c'est-à-dire déterminer si un assemblage peut être conservé en réacteur jusqu'au prochain arrêt prévu ou non, un schéma limite est défini par rapport à l'amplitude et à la cinétique du signal issu des produits de fission émetteurs de neutrons retardés (PFEND).

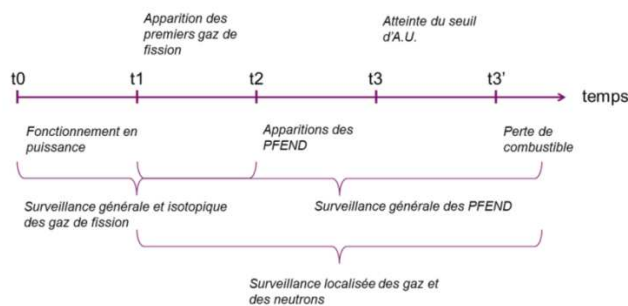


Figure 2-15 : Diagramme d'évolution des ruptures de gaines combustible [21]

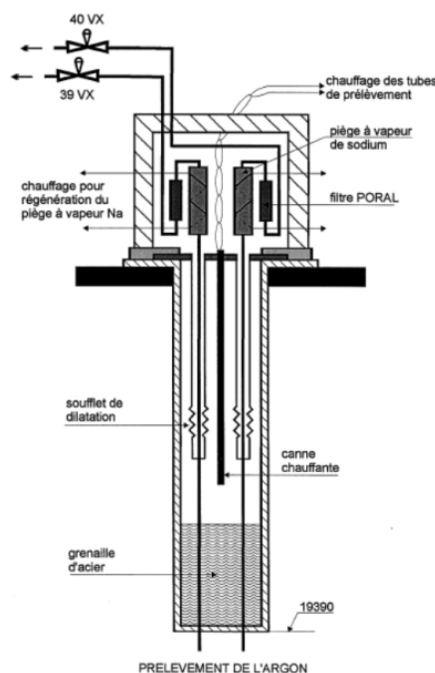
### 2.3.2.2.2. *Le suivi des gaz rares de fission*

Les produits de fission gazeux accumulés dans les vases d'expansion (Xe, Kr) durant l'irradiation sont amenés à être libérés dans le sodium primaire en cas de rupture de gaine, sous forme de bouffées plus ou moins violentes dans les premiers instants de la rupture puis de manière continue en fonction de leur diffusion dans le combustible. Ces gaz circulent dans le caloporteur chaud avant qu'une partie ne soit dégazée dans le ciel de pile composé d'argon. Le suivi de ces gaz, pouvant être basé sur une mesure globale (chambre d'ionisation à circulation) ou un suivi isotopique (spectrométrie gamma), s'effectue via deux systèmes de prélèvement :

- La DRG gaz pour laquelle le prélèvement s'effectue dans le ciel de pile d'argon.
- La LRG gaz (Localisation de Rupture de Gaine) pour laquelle le prélèvement s'effectue dans le sodium primaire au-dessus des assemblages. Il permet également une fonction de localisation de l'assemblage fuyard.

#### 2.3.2.2.2.1. *Le système DRG gaz*

L'instrumentation de DRG gaz est équivalente sur PHENIX et sur SUPERPHENIX et se compose de deux systèmes de prélèvement identiques en parallèle. L'argon du ciel de pile est extrait via une des deux voies de prélèvement et transite dans un pot d'épuration au niveau de la dalle réacteur rempli de laine d'acier inoxydable destiné à stopper les aérosols de sodium. La redondance du système de prélèvement permet ainsi de régénérer un pot d'épuration tout en conservant l'autre voie fonctionnelle. Le sodium passe ensuite dans un filtre Poral où il finit de se refroidir. La Figure 2-16 illustre le module de prélèvement d'argon de SUPERPHENIX.



**Figure 2-16 : Module de prélèvement d'argon de SUPERPHENIX [21]**



### 2.3.2.2.2. Le système LRG gaz.

Le système LRG gaz utilisé dans PHENIX est composé de 121 tubes permettant des prélèvements au-dessus des assemblages. Ce prélèvement peut s'effectuer selon deux modes :

- Le mode « GN » dans lequel les 121 prélèvements se mélangent dans une chambre. Le mélange de sodium représente 1% du sodium ayant transité dans le cœur. Ce mode est utilisé dans un but de détection.
- Le mode « G3 » dans lequel les prélèvements s'effectuent au-dessus de trois assemblages situés respectivement à 120° les uns des autres avant d'être mélangés dans la chambre. Ce mode permet la localisation de l'assemblage présentant une rupture de gaine. Le mélange de sodium représente 1% du sodium ayant transité dans les trois assemblages sélectionnés.

Les prélèvements transitent ensuite par un bloc de mesure DND (voir section 4.2) puis par une colonne de dégazage à contre-courant d'argon. Les gaz séparés circulent ensuite dans un pot d'épuration puis dans un filtre Poral comme dans le cas de la DRG gaz. Lorsque le groupement de trois assemblages fuyards est identifié, une analyse des groupements voisins permet la localisation de la source émettrice. SUPERPHENIX ne possédait pas ce système LRG gaz en raison de contraintes d'exploitation élevées. La Figure 2-17 illustre le mécanisme de la LRG de PHENIX.

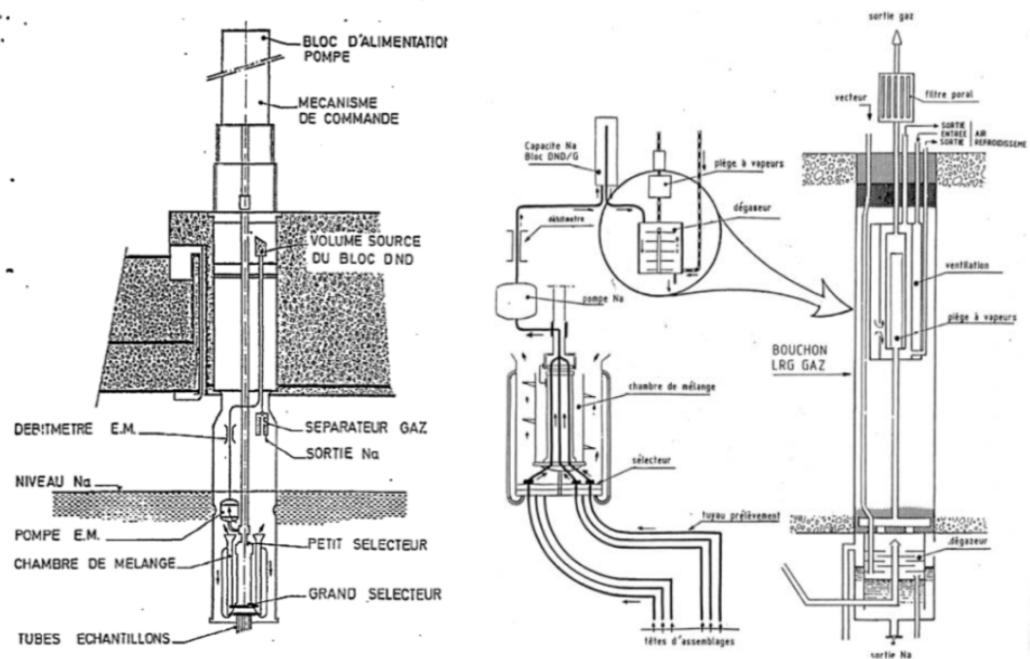


Figure 2-17 : Mécanisme de la LRG [21]

### 2.3.2.2.2.3. *Le bruit de fond*

Les prélèvements gazeux DRG et LRG sont pollués par un bruit de fond ayant pour principale origine deux produits d'activation gazeux présents dans le sodium.

- Le néon 23 ( $T_{1/2}=37$  s), produit par activation du sodium via la réaction  $^{23}\text{Na}(n,p)$ . Ce radioélément est émetteur  $\beta^-$  (énergie moyenne 1898 keV) et  $\gamma$  (440 keV).
- L'argon 41 ( $T_{1/2}=1,8$  h), produit majoritairement par activation du potassium via la réaction  $^{41}\text{K}(n,p)$ . Le  $^{41}\text{K}$  est présent dans le sodium sous forme d'impuretés (teneur de 200 ppm à PHENIX). L'activation de l'argon de couverture  $^{40}\text{Ar}(n,\gamma)$  est une contribution minoritaire. Il est émetteur  $\beta^-$  (énergie moyenne 464 keV) et  $\gamma$  (1294 keV).

Le néon 23 est produit en grande quantité mais sa période de 37 secondes permet de réduire sa contribution d'un facteur 7000 grâce à une ligne à retard d'environ 9 minutes. L'activité de l'argon 41 relevée à PHENIX était environ 3000 fois inférieure à celle du néon 23 mais constituait néanmoins une source de bruit importante liée à la diffusion Compton du rayonnement gamma à 1,294 MeV [21]. Si l'utilisation d'une ligne à retard permet de réduire le bruit de fond, elle possède également l'inconvénient d'induire des pertes de signal utile en raison de la décroissance des produits de fission.

### 2.3.2.2.2.4. *Moyens de mesures*

Après prélèvement et purification des gaz, ceux-ci transitent vers différents postes de mesure. Ces derniers sont définis ci-dessous :

- les chambres d'ionisation pour les mesures  $\beta$  et  $\gamma$ . Deux types de détecteurs sont utilisés selon le niveau d'activité. Les chambres d'ionisation à circulation permettent un suivi en continu de la valeur globale de l'activité inférieure à  $0,4 \text{ TBq}\cdot\text{m}^{-3}$  en équivalent  $^{133}\text{Xe}$ . Elles sont utilisées à la fois sur le circuit DRG gaz et LRG gaz. Des chambres d'ionisation dites «Haute Activité » sont installées sur le circuit DRG gaz et permettent un suivi global de l'activité en situation accidentelle (inférieur à  $10^3 \text{ TBq}\cdot\text{m}^{-3}$  en équivalent  $^{133}\text{Xe}$ ).
- La spectrométrie gamma installée en parallèle des chambres d'ionisation. Dans ce système, le gaz passe devant une diode germanium hyper pur (diode HPGe). La très bonne résolution (environ 0,2% à 1332 keV) du détecteur permet une identification fine des gaz rares. L'inventaire en radio-isotopes renseigne sur l'état de la rupture avec notamment l'apparition de périodes courtes avec l'aggravation de la rupture. Cette spectrométrie remplace le poste de chromatographie et est implantée à la fois sur la ligne DRG gaz et LRG gaz (voir Figure 2-18).

- La spectrométrie de masse, installée sur la ligne DRG gaz, permet après passage dans une ligne d'enrichissement de quantifier la concentration en gaz rares stables. Le rapport des signaux entre gaz rares stables et radioactifs apporte une information sur le taux de combustion de l'assemblage rupté et donc une pré-localisation de celui-ci.

Un système de LRG par scrutation des assemblages était installé sur SUPERPHENIX. Celle-ci permettait la détection de perte d'étanchéité lorsque le réacteur était à l'arrêt et pendant les phases de manutention du combustible. Ce système avait pour but de mesurer les relâchements de gaz rares de fission lors de la manutention des assemblages via prélèvement de l'argon de balayage du ringard de manutention, épuration de cet argon et mesure via une chambre d'ionisation à circulation.

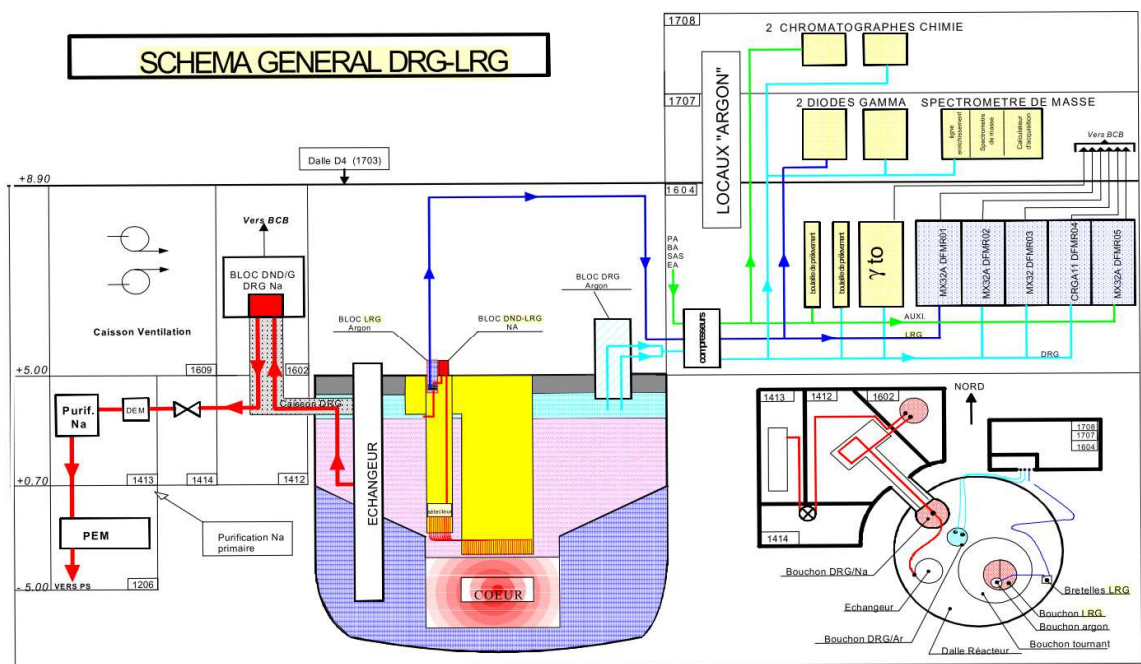


Figure 2-18 : Schéma général DRG-LRG de PHENIX [22]

### 2.3.2.2.2.5. Retour d'expérience

La LRG gaz de PHENIX s'est avérée efficace avec une détection en mode « GN » plus rapide que les mesures neutroniques et plus rapide que la DRG gaz en raison d'un taux de dégazage plus faible que dans le ciel de pile et d'une concentration en  $^{41}\text{Ar}$  moins importante. La concentration en  $^{23}\text{Ne}$  plus élevée dans le sodium est compensée par une ligne à retard plus longue (neuf minutes en DRG contre quinze minutes en LRG). L'étape de prospection des assemblages en mode « G3 » est rapide sur PHENIX (70 s pour le prélèvement et 10 s pour le déplacement). En revanche, le mode « G1 » qui consistait à identifier directement l'assemblage émetteur n'a jamais fonctionné. L'identification de cet assemblage se faisait par prospection sur les premiers assemblages voisins, opération plus coûteuse en temps. Il a également été relevé des problèmes de colmatage rapide des pots d'épuration par les aérosols de sodium. L'intérêt du

poste de spectrométrie de masse a été restreint par la nécessité d'une phase d'enrichissement portant le temps d'un cycle à 1h50. Par ailleurs, une fonction de localisation de rupture de gaine était également prévue via l'incorporation à la construction de l'assemblage d'un mélange de différents isotopes de xénon et krypton stables représentatifs de l'assemblage. Cette technique difficile à mettre en œuvre sur les réacteurs de grande taille n'a pu être implémentée sur PHENIX et SUPERPHENIX. Les chambres d'ionisation révèlent une grande efficacité afin d'assurer une détection précoce des gaz rares de fission. Le remplacement de la chromatographie couplée à un détecteur iodure de sodium dopé au thallium NaI(Tl) par la spectrométrie gamma HPGe a permis de supprimer l'étape de séparation des gaz devenue inutile faisant ainsi passer le temps de cycle de mesure de dix minutes à cinq minutes [22].

#### 2.3.2.2.3. *Le suivi des halogènes*

Comme les gaz rares de fission, d'autres produits de fission, de nature physico-chimique différente, sont amenés à être relâchés de l'aiguille en cas de rupture de gaine. Le relâchement de ces produits de fission est fonction de paramètres comme leur temps de demi-vie, leur état ou leur affinité avec l'oxyde combustible et le sodium. Parmi ces radioéléments, les produits de fission volatiles sont, après les gaz rares de fission, les plus susceptibles d'être relâchés hors du combustible en raison de leur état gazeux dans celui-ci. Le relâchement de certains de ces PF comme les produits de fission émetteurs de neutrons différés (PFEND) peuvent être suivis grâce à un comptage neutron global. Les PFEND suivis sont les halogènes  $^{87}\text{Br}$ ,  $^{88}\text{Br}$  et  $^{137}\text{I}$  de périodes comprises entre 15 et 60 secondes. Contrairement aux gaz rares de fission, cette mesure génère un arrêt d'urgence sur atteinte d'un seuil de  $25 \text{ cm}^2 \cdot \text{R}^1$ .

Deux mesures distinctes permettent la détection et la localisation de rupture de gaine via le suivi de l'activité liée au PFEND.

- La DRG sodium où le suivi est effectué par prélèvement d'un échantillon représentatif du cœur.
- La LRG sodium où le suivi est effectué sur un échantillon représentatif du sodium circulant dans un groupement de trois assemblages.

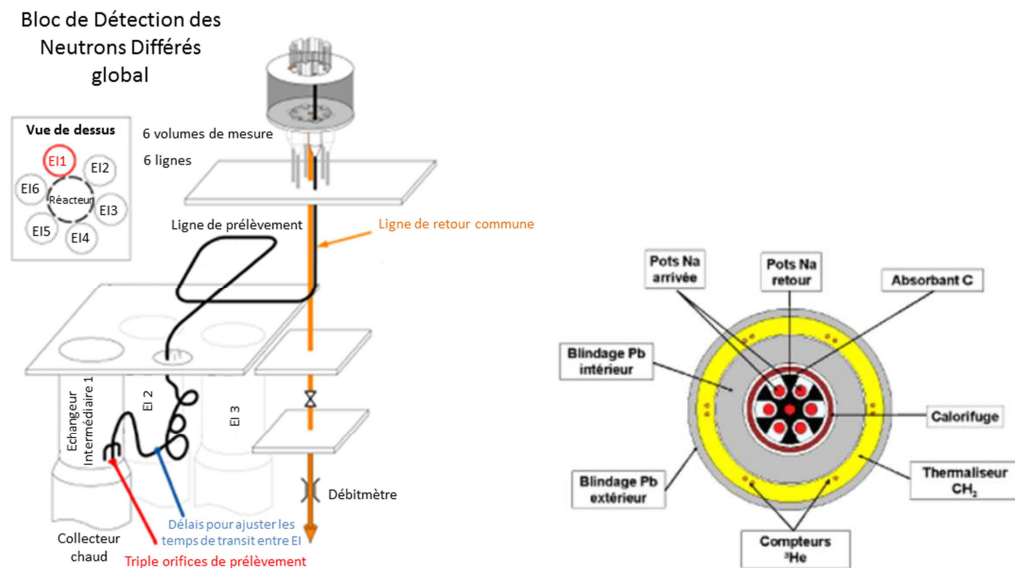
Les autres produits de fission, non gazeux ou non émetteurs de neutrons retardés, ne peuvent être suivis.

---

<sup>1</sup> La surface équivalente de recul (unité  $\text{cm}^2 \cdot \text{R}$ ) correspond à la surface nue de combustible léchée par le sodium dont l'émission de produits de fission émetteurs de neutrons différés est réalisée par phénomène de recul [20].

### 2.3.2.2.3.1. Le système DRG sodium

Deux systèmes différents ont été implémentés sur PHENIX et sur SUPERPHENIX. Sur PHENIX, la DRG sodium comprend six prélèvements sectorisés de sodium effectués derrière chacun des six échangeurs intermédiaires. Les temps de transit des six lignes de prélèvement sont homogénéisés à 24 secondes via l'ajustement des lignes de retard pour parvenir au bloc de mesure DND. Le bloc DND est composé de six pots de mesure séparés par un absorbant en graphite. Cette isolation des pots de mesure permet une prélocalisation de la source émettrice par sixième de cœur. Chaque pot de mesure est en regard de deux compteurs proportionnels  $^3\text{He}$  au sein d'une couche de polyéthylène. Cette dernière permet de thermaliser les neutrons, augmentant ainsi la probabilité de réaction (n,p) dans le compteur  $^3\text{He}$  (probabilité de 5313 barns pour des neutrons de 25 meV [23]). Une épaisseur de plomb est située en amont des détecteurs  $^3\text{He}$  pour limiter d'une part le débit de dose au niveau des compteurs et d'autre part pour limiter la production de photoneutrons par réaction ( $\gamma,n$ ) des gamma de 2,75 MeV du sodium 24 sur le deutérium présent dans la couche de polyéthylène. Ce système sera détaillé plus longuement dans la section 4.2 où une optimisation d'un tel poste de mesure est proposée. La Figure 2-19 illustre le système DRG sodium de PHENIX.



**Figure 2-19 : Système de prélèvement (à gauche) et vue en coupe du bloc DND de la DRG sodium de PHENIX [21]**

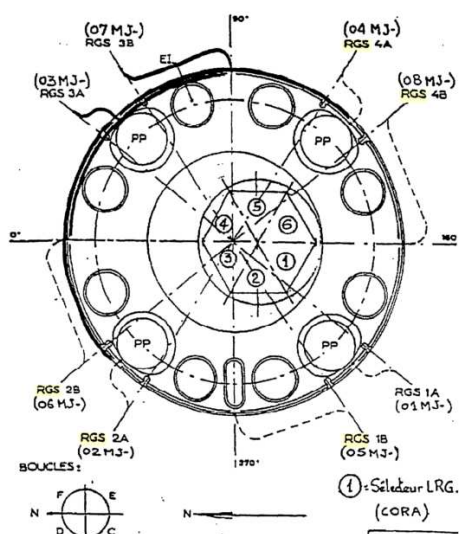
La DRG sodium de SUPERPHENIX repose sur deux systèmes indépendants de quatre prélèvements couvrant chacun un quart du cœur. Les deux systèmes se recouvrent partiellement afin d'assurer une redondance. La sectorisation permet d'effectuer une prélocalisation. Les prélèvements sont envoyés vers huit pots DND situés au niveau de la dalle réacteur constitués d'un calorifuge, de plomb et de polyéthylène pour les mêmes raisons que précédemment.

Chaque pot est entouré de trois compteurs  $^3\text{He}$ . Le dépassement de seuil de deux compteurs sur trois entraîne l'arrêt d'urgence.

La DND Intégrée (DND/I) [24]–[26] a également été implémentée sur SUPERPHENIX à titre expérimental. Après qualification de la chambre à fission haute température CFUC06 à PHENIX, onze détecteurs ont été installés à SUPERPHENIX dans les doigts de gant solidaires des échangeurs intermédiaires. Ces chambres peuvent fonctionner à plus de  $600^\circ\text{C}$  sous des flux gamma supérieur à  $10^5 \text{ Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ . L'absence de prélèvement de sodium est un atout majeur.

### 2.3.2.2.3.2. Le système LRG sodium

Sur PHENIX, la LRG sodium utilise le même système de prélèvement que la LRG gaz utilisant les modes « GN » et « G3 ». Le sodium rejoint un pot DND de conception classique avec six détecteurs  $^3\text{He}$  regroupés en deux voies de trois compteurs. Sur SUPERPHENIX, la LRG sodium présente un aspect modulaire avec six modules DND n'intégrant qu'un seul compteur  $^3\text{He}$  couvrant chacun 1/6 du cœur. Chaque module possède son sélecteur rotatif lui permettant de scruter 1/6 des assemblages (63 assemblages) en mode « GN » ou « G1 ». La Figure 2-20 illustre les différents blocs composant la DRG et la LRG sodium de SUPERPHENIX.



**Figure 2-20 : Système de prélèvement sur SUPERPHENIX - DRG sodium (RGS) et LRG sodium (1-6) [20]**

### 2.3.2.2.3.3. Le bruit de fond

L'activité du sodium liée aux produits d'activation est très importante. A titre d'exemple, on notera les activités estimées au niveau du bloc DND de la DRG sodium de PHENIX [21].

- $100 \text{ TBq}\cdot\text{m}^{-3}$  pour le  $^{24}\text{Na}$  produit par réaction  $^{23}\text{Na}(n,\gamma)$
- $20 \text{ TBq}\cdot\text{m}^{-3}$  pour le  $^{23}\text{Ne}$  produit par réaction  $^{23}\text{Na}(n,p)$

- 5 TBq.m<sup>-3</sup> pour le <sup>20</sup>F produit par réaction <sup>23</sup>Na(n,α)
- 500 GBq.m<sup>-3</sup> pour le <sup>22</sup>Na produit par réaction <sup>23</sup>Na(n,2n)

Les mesures DND présentent l'avantage de s'abstenir des activités β<sup>-</sup> et d'une grande partie des activités γ (effet de pile-up possible) des produits d'activation cités ci-dessus. En revanche, le signal DND est soumis à trois sources de pollution.

- Le bruit des neutrons provenant du cœur.
- Le bruit lié à la pollution des gaines par des résidus de matière fissile lors de la conception des aiguilles.
- Le bruit des photoneutrons produits par réaction <sup>2</sup>D(γ,n) sur le deutérium présent en isotopie naturelle dans le polyéthylène. Ces photoneutrons apparaissent en raison de l'émission gamma du <sup>24</sup>Na dont l'énergie (2,75 MeV) est supérieure au seuil de la réaction photonucléaire (2,2 MeV).

#### 2.3.2.2.3.4. *Retour d'expérience*

La DRG sodium de PHENIX a vu son efficacité limitée notamment à cause d'un système de prélèvement n'offrant qu'une faible couverture de la cuve. L'évolution de la thermo-hydraulique du collecteur pouvait ainsi influencer la réponse du système. De plus, l'isolation des six pots de sodium grâce à l'étoile en graphite s'est avérée décevante rendant la sectorisation difficile. Sur SUPERPHENIX, l'utilisation de blocs DND distincts pour les différents secteurs suivis ainsi que leur redondance par recouvrement partiel des deux systèmes indépendants est par conception une amélioration par rapport à PHENIX. L'utilisation de rampes de prélèvement redondées plutôt que des tridents permet une meilleure homogénéité du prélèvement et donc de la réponse du système. L'emplacement des huit pots DND au niveau de la dalle réacteur permet de réduire les délais de transit sans augmenter la contribution des neutrons du cœur à la pollution du signal. Toutefois, l'absence de rupture de gaine sur SUPERPHENIX n'a pas permis de qualifier le dispositif dans les conditions réelles d'utilisation. Le dispositif de prélèvement n'était également pas satisfaisant en raison de déconnexions mécaniques de l'embout de prélèvement lors des transitoires rapides. Les DRG sodium de PHENIX et SUPERPHENIX sont toutes les deux soumises aux bruits provenant à la fois de la pollution des gaines et des photoneutrons. Les mesures sont corrigées des photoneutrons par compensation via une chambre d'ionisation et des ajustements sont également réalisés en fonction de la puissance, du débit du sodium primaire ainsi que du débit de prélèvement.

Comme pour la LRG gaz, le mode de prospection « G1 » n'a pu être utilisé avec la LRG sodium. Le mode de prospection « G3 » a cependant bien fonctionné avec un temps de

prospection de 80 secondes en mode normal et 20 secondes en mode rapide. La LRG sodium de SUPERPHENIX s'est vue moins efficace avec un temps de prospection de plus de deux minutes et des blocages mécaniques au niveau des rampes de prélèvement. De plus, la surveillance des assemblages fertiles n'était pas prise en compte.

Concernant les chambres à fission hautes températures (CFUC06), si l'implantation en cuve et l'absence de prélèvement permet un temps de réponse très rapide (six secondes à SUPERPHENIX), cette proximité avec le cœur entraîne une contribution de bruit très importante liée aux neutrons du cœur. De plus, l'efficacité de détection est plus faible qu'avec un compteur  $^3\text{He}$ . Il est à noter que ces chambres souffrent également d'un phénomène de décharges partielles encore mal compris aujourd'hui et qui font l'objet de travaux au sein du laboratoire LCAE du CEA Saclay [27]–[29].

## 2.4. Conclusion et perspectives

Les réacteurs de quatrième génération font actuellement l'objet de nombreux programmes de R&D afin de pouvoir répondre à moyen terme aux problématiques de pérennisation du combustible et de prolifération, tout en augmentant les standards de sûreté. La filière sodium représentée par le projet de prototype de RNR-Na industriel ASTRID apparaît comme une des plus viables notamment en raison de sa maturité technologique avancée.

Visant un fonctionnement en cœur propre, la surveillance de l'intégrité de la première barrière de confinement, à savoir la gaine combustible, est essentielle. Celle-ci se traduit par une instrumentation nucléaire permettant le suivi (détection et localisation) des relâchements de produits de fission dans le sodium primaire en cas de rupture.

### 2.4.1. Synthèse du REX sur les mesures DRG/LRG

Si les systèmes DRG et LRG gaz ont démontré de bonnes performances dans l'ensemble, ceux-ci présentent l'inconvénient d'être tributaires de lignes à retard afin de réduire au maximum les composantes de bruit provenant du néon 23 et de l'argon 41. La mesure est donc retardée et est toujours partiellement bruitée. De plus, ces mesures ne concernent que les gaz de fission. Les systèmes DRG et LRG sodium permettent le suivi des PFEND lors de l'évolution d'une rupture gaz en rupture ouverte. Ces mesures via compteurs proportionnels  $^3\text{He}$  sont sensibles au débit de dose ainsi qu'aux photoneutrons issus de l'activité importante du sodium 24. Si des délais et des blindages sont implémentés, il reste difficile de s'affranchir de ces perturbations qui doivent faire l'objet de compensations. De plus, les PFEND issus de la pollution des gaines représentent également une source de bruit pour ces systèmes, tout comme les neutrons issus du cœur. Comme pour les systèmes gaz, ceux-ci ne permettent le suivi global que d'un certain nombre de produits de fission (PFEND) et le suivi isotopique est inexistant.



Le Tableau 2-5 résume les capacités de détection de cette instrumentation.

<b>PF</b>	<b>Suivi intégral par comptage total</b>	<b>Suivi isotopique par spectrométrie</b>
Gaz rares (Xe, Kr)	Oui	Oui
Halogènes (Br, I)	Oui	Non
Autres PF (Rb, Cs, ...)	Non	Non

**Tableau 2-5 : PF suivis par l'instrumentation conventionnelle en RNR-Na**

### 2.4.2. Perspectives

En raison de la nécessité de fonctionnement en cœur propre et des lacunes de l'instrumentation actuelle (limitation des produits de fission suivis, absence de suivi isotopique hormis pour les gaz et délais importants), il est nécessaire d'envisager une instrumentation permettant le suivi isotopique de tous les produits de fission dans des délais plus courts afin d'apporter un diagnostic enrichi à l'opérateur à la fois sur l'état de la rupture et sur sa cinétique d'évolution, lui permettant ainsi d'engager les mesures adéquates plus rapidement. C'est dans cette optique que cette thèse propose une étude de faisabilité concernant une spectrométrie gamma hauts taux de comptage sur le sodium primaire permettant ainsi de combler les lacunes précédemment évoquées. Déjà en 1977, l'intérêt d'une telle spectrométrie était reconnu [30] mais la technologie de l'époque ne pouvait répondre à ce besoin en raison notamment d'électroniques non adaptées aux très fortes activités et dynamiques. La technologie actuelle permet d'appréhender ces problématiques. Une spectrométrie gamma sur le sodium est ici étudiée.

# 3 PHENOMENOLOGIE DES RUPTURES DE GAINES

## 3.1 Introduction

Après avoir souligné l'importance du suivi des ruptures de gaines dans le chapitre précédent, nous nous intéressons désormais à la compréhension des phénomènes à l'origine de ces dernières. Une description des aiguilles combustibles utilisées en RNR-Na et plus particulièrement envisagées dans ASTRID est tout d'abord réalisée. Les modifications de l'oxyde combustible liées à l'irradiation sont ensuite exposées et nous nous attarderons particulièrement sur la migration des produits de fission à l'intérieur des pastilles combustibles. L'influence de cette évolution du combustible sur l'intégrité de la gaine combustible est soulignée. En effet, nous verrons que celle-ci peut être soumise à de fortes contraintes pouvant aboutir à une rupture de gaine, celle-ci pouvant être aggravée par le développement de la réaction oxyde-sodium (ROS). Les différents types de ruptures de gaines et leurs signatures en termes de rejets dans le sodium primaire sont enfin exposés.

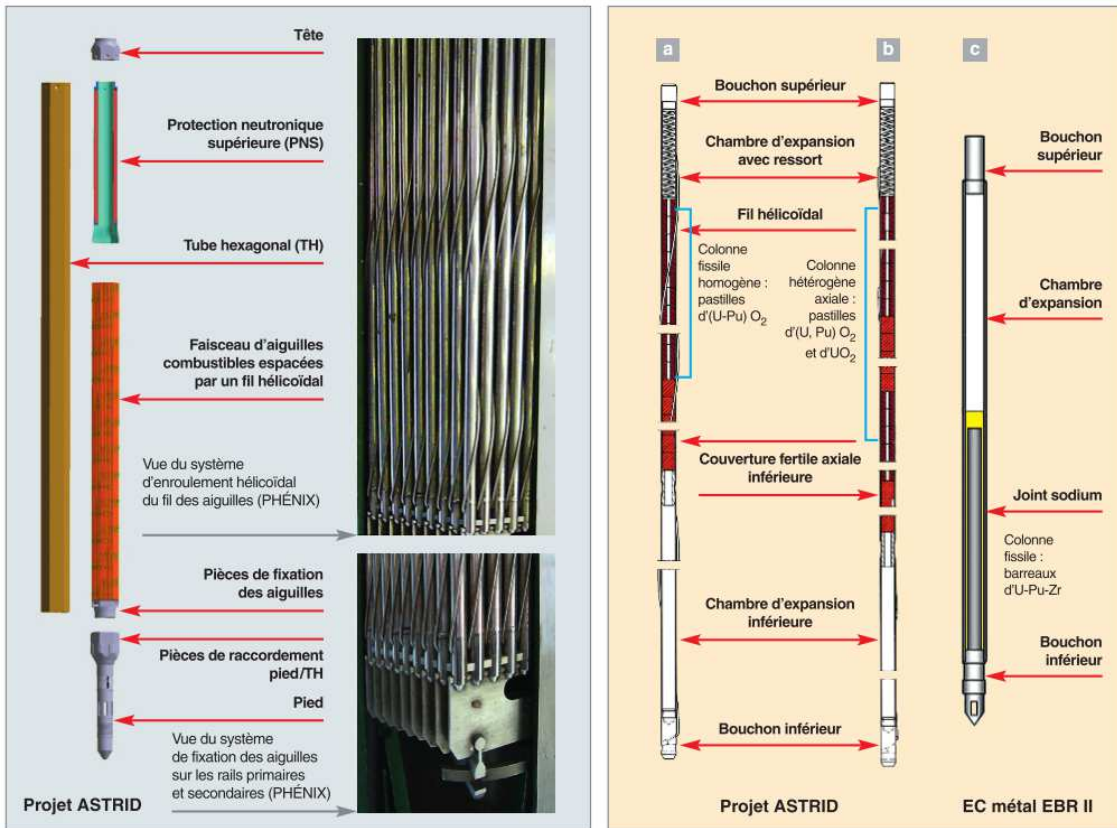
## 3.2 Evolution de l'aiguille combustible avec l'irradiation

### 3.2.1 L'aiguille combustible

Différents types de combustible sont susceptibles d'être utilisés en RNR-Na :

- L'oxyde mixte (U,Pu)O<sub>2</sub>
- Les céramiques de carbure et de nitrure d'uranium et de plutonium
- Les alliages métalliques type U-Pu-Zr

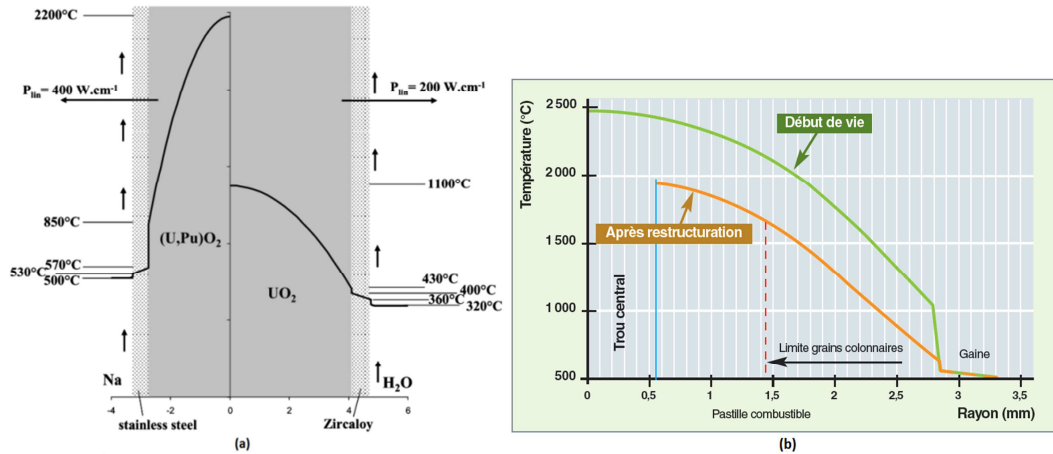
L'oxyde mixte (U,Pu)O<sub>2</sub> (MOX) est le combustible le plus fréquemment utilisé en RNR-Na et est également envisagé pour ASTRID. Celui-ci présente l'avantage d'avoir une très bonne stabilité thermique, un point de fusion élevé, une fabrication aisée et bénéficie d'un REX comme aucun autre combustible, grâce notamment à son utilisation dans les réacteurs à eau légère [8]. Sa teneur en plutonium est généralement comprise entre 15 % et 30 % [31]. Le combustible se présente sous la forme de pastilles frittées de deux types, pleines ou annulaires. Alors que le choix de pastilles pleines avait été fait pour PHENIX, ASTRID s'oriente vers l'utilisation de pastilles annulaires, tout comme SUPERPHENIX. Celles-ci présentent l'avantage de faire diminuer la température du cœur et la densité de remplissage plus faible autorise l'atteinte de taux de combustion plus important. Ces pastilles sont empilées dans l'aiguille combustible afin de former une colonne de l'ordre d'un mètre de hauteur. Cette colonne est qualifiée soit d'homogène (constituée uniquement de pastilles fissiles) soit d'hétérogène (alternance de zones fissiles et de zones fertiles) comme illustré sur la Figure 3-1. L'option de la colonne hétérogène est privilégiée pour ASTRID. Un jeu initial de l'ordre de 200 à 300 μm est prévu entre le combustible et la gaine pour anticiper le gonflement des pastilles. Des vases d'expansion se situent de part et d'autre du combustible. Initialement remplis d'hélium à pression atmosphérique, ils permettent de récupérer les gaz de fission relâchés en grande quantité au cours de la vie du combustible afin de limiter la pression interne. Un ressort dans le vase supérieur permet le maintien mécanique de la colonne combustible. Deux bouchons soudés ferment l'aiguille. La gaine, d'une épaisseur de l'ordre de 0,4 mm, fait l'objet de nombreuses études concernant le matériau de fabrication. Celui-ci doit en effet posséder de bonnes propriétés mécaniques notamment pour éviter un gonflement excessif même sous forte irradiation, être résistant à la corrosion, être le plus transparent possible aux neutrons et être étanche concernant la diffusion des produits de fission vers le sodium primaire. Ces propriétés doivent être conservées y compris pour des taux combustion élevés. Si l'utilisation d'acier ferritique ou martensitique à dispersion d'oxyde (ODS) apparaît comme prometteuse en raison d'un très faible gonflement avec le taux de combustion, des qualifications complémentaires de ces matériaux sont nécessaires, notamment via des irradiations dans ASTRID. C'est pourquoi le réacteur démarrera avec des gaines combustibles en acier austénitique 15-15 Ti écroui qui est aujourd'hui le matériau le plus abouti pour cette application.



**Figure 3-1 : Assemblage combustible d'un RNR-Na (à gauche), exemples de conceptions d'aiguilles combustibles pour un RNR-Na (à droite) [8].**

### 3.2.2 Gradient de température

En début de vie du combustible, les températures atteintes au sein de celui-ci sont très élevées, dépassant les 2000°C dans sa zone centrale. Ces températures élevées s'accompagnent d'un fort gradient de température radial. Ces conditions sont responsables d'une modification profonde de la microstructure de la matrice d'oxyde combustible dès les premiers instants de l'irradiation. L'oxyde combustible étant cassant à basse température, il se fragilise et se fissure dès la première montée en puissance sous l'effet des contraintes thermiques importantes. L'expansion thermique ainsi que le mouvement des fragments de combustible lié aux vibrations participe à l'augmentation du diamètre des pastilles et donc à une réduction du jeu pastille/gaine. Le transfert thermique entre combustible et gaine est alors augmenté en ayant pour conséquence une diminution de la température du combustible. D'autres paramètres comme la distribution en oxygène et la distribution des porosités participent à cette diminution de température et seront abordés dans les sections suivantes. La Figure 3-2 illustre le gradient de température au sein du combustible.



**Figure 3-2 : Exemple de profil radial de température dans un crayon combustible de réacteur rapide et dans un REP (a) ; Températures calculées pour une aiguille PHENIX irradiée à 430 W.cm<sup>-1</sup> (b)**

### 3.2.3 Distribution en oxygène

Le combustible (U,Pu)O<sub>2</sub> produit est légèrement hypo-stœchiométrique avec un rapport O/M<sup>2</sup> compris entre 1,93 et 2,00. Cette distribution en oxygène est amenée à évoluer au cours de l'irradiation avec des conséquences sur le combustible. Une migration des atomes d'oxygène est observée, descendant le gradient thermique, rendant la zone centrale des pastilles encore plus hypo-stœchiométrique et la périphérie proche de la stœchiométrie. Cette migration s'explique par deux phénomènes:

- La migration par transport de vapeur

Les températures du combustible permettent la vaporisation de CO ou de CO<sub>2</sub> (le carbone est trouvé dans l'oxyde sous forme d'impureté). Les failles radiales ainsi que les porosités interconnectées forment un réseau de transport pour ces vapeurs qui migrent contre le gradient de température vers la périphérie des pastilles.

- La migration en phase solide

Comme généralisé par les processus thermodynamiques irréversibles [32], le gradient de température au sein de l'aiguille donne lieu à une diffusion des atomes d'oxygène dans la matrice combustible. L'oxygène migre alors sans réseau de transport privilégié par diffusion thermique.

La distribution en oxygène est également dépendante du processus de fission. Chaque fission entraîne la libération de deux atomes d'oxygène. Si une partie de cet oxygène peut se

<sup>2</sup> Rapport entre le nombre d'atomes d'oxygène et le nombre d'atomes de matière (M=U+Pu)

recombinaison avec certains produits de fission, tous ne l'acceptent pas (métaux nobles et gaz rares). L'oxygène excédentaire est alors dissous dans la matrice combustible et le ratio O/M augmente. Plus particulièrement, cet enrichissement en oxygène est fortement dépendant de l'état dans lequel se retrouve le molybdène comptant pour plus de 20% des produits de fission. Celui-ci se retrouve soit sous forme d'oxyde, soit sous forme métallique en fonction du potentiel d'oxygène local du combustible. En début d'irradiation, le molybdène se trouve à l'état métallique, trop peu de produits de fission peuvent se recombinaison avec les atomes d'oxygène issus de la fission, ce qui favorise donc l'augmentation du rapport O/M. Lorsque le taux de combustion approche la valeur de 10% FIMA<sup>3</sup> et que le combustible tend vers la stœchiométrie, le potentiel d'oxygène dépasse le seuil d'oxydation du molybdène. Les atomes d'oxygène issus de la fission se combinent avec un plus grand nombre de produits de fission permettant ainsi de conserver un combustible proche de la stœchiométrie avec un rapport O/M proche de 2.

### 3.2.4 Réagencement du combustible

Au-delà de la fragilisation de l'oxyde combustible dès les premiers instants de l'irradiation en raison des contraintes thermiques évoquées dans la section 3.2.2, il est constaté un grossissement des grains combustible dans les régions où la température est comprise entre 1300°C et 1800°C. Ce grossissement est lié à la minimisation de l'énergie de tension de surface des frontières des grains et donc au déplacement de ces frontières pour former des grains plus importants. Dans les zones au-delà d'environ 1900°C, on observe également une migration des porosités vers la zone centrale due à un phénomène de vaporisation-condensation à l'intérieur des porosités. Celles-ci sont présentes dès la conception du combustible à hauteur de 5% minimum. A ces températures, les vapeurs de combustible, principalement UO, UO<sub>2</sub>, UO<sub>3</sub>, PuO et PuO<sub>2</sub> [31], se forme au niveau de la surface chaude du pore pour se condenser sur la surface froide. Il en résulte ainsi une remontée des porosités dans le sens du gradient de température vers la zone centrale participant au développement du trou central. Ces pores sont de forme lenticulaire orientés selon le gradient de température. Ils engendrent dans leur sillage la formation de cristaux colonnaires très denses. Ce phénomène de vaporisation-condensation joue également un rôle dans la redistribution du plutonium au sein du combustible. Cette redistribution a lieu dès le début de l'irradiation [33] avec un enrichissement de la zone centrale en plutonium. Les zones du combustible concernées par cette migration de plutonium sont les zones chaudes présentant une température supérieure ou égale à 1900°C [34]. Deux mécanismes principaux sont à l'origine de cette redistribution [35], évoqués ci-dessous :

---

<sup>3</sup> Fissions per Initial Metal Atom, 1% FIMA équivaut à un taux de combustion d'environ 10 GWj/t

- La redistribution par migration des pores lenticulaires

Dans les conditions stœchiométriques et légèrement sous stœchiométriques observées en RNR-Na (O/M compris entre 1,93 et 2,00), les composés d'uranium sont préférentiellement concernés par le phénomène de vaporisation-condensation en raison de leur pression de vapeur saturante supérieure à celles des composés de plutonium. Il en résulte donc un appauvrissement en uranium autour de la surface chaude des pores au profit de la surface froide et par conséquent un enrichissement en plutonium autour de la surface chaude. La migration des pores vers la zone centrale plus chaude entraîne donc avec elle une concentration accrue de plutonium [36]. Cependant, ce mécanisme seul n'explique qu'une faible part de la concentration accrue de plutonium dans la région centrale du combustible.

- La diffusion thermique dans l'état solide

Comme pour l'oxygène, le plutonium migre également au sein de la matrice combustible par diffusion thermique. Cette diffusion suit le gradient de température et participe de façon majoritaire à l'enrichissement en plutonium de la zone centrale.

### 3.3 Les produits de fission [31], [37]–[39]

#### 3.3.1 La production de produits de fission

Avec un taux de combustion recherché d'environ 15% FIMA en RNR-Na contre environ 6% FIMA dans un REP, l'impact physique et chimique des produits de fission est d'autant plus conséquent dans les réacteurs rapides en raison d'une production bien plus abondante. En effet ces produits de fission sont amenés à représenter 30% d'atomes nouveaux. Ces produits de fission vont donc jouer un rôle important dans la modification des propriétés du combustible et la dégradation de la gaine combustible. Ceux-ci sont issus de la fission de l'uranium 235 et du plutonium 239, chaque fission donnant lieu à la création de deux produits de fission dit « léger » et « lourd » suivant un rendement de production illustré sur la Figure 3-3.

Les produits de fission ainsi créés se présentent sous des états chimiques différents qui dépendent de la température et du potentiel d'oxygène local. Par exemple, le potentiel d'oxygène de l'équilibre Ce/Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ou Nd/Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> est très faible, ce qui explique que le cérium et le néodyme seront toujours sous forme d'oxyde. Au contraire, le potentiel d'équilibre Ru/RuO<sub>2</sub> ou Rh/RhO<sub>3</sub> est très élevé : pour cette raison, le ruthénium et le rhodium seront alors toujours sous forme métallique. Concernant le potentiel d'équilibre Mo/MoO<sub>2</sub>, celui-ci est proche du potentiel en oxygène imposé par le combustible. Le molybdène pourra ainsi être trouvé soit sous forme oxyde soit sous forme métallique comme évoqué dans la section 3.2.3. La Figure 3-4 résume les principaux produits de fission ainsi que leur état chimique. Le Tableau 3-1 résume leurs différentes proportions.

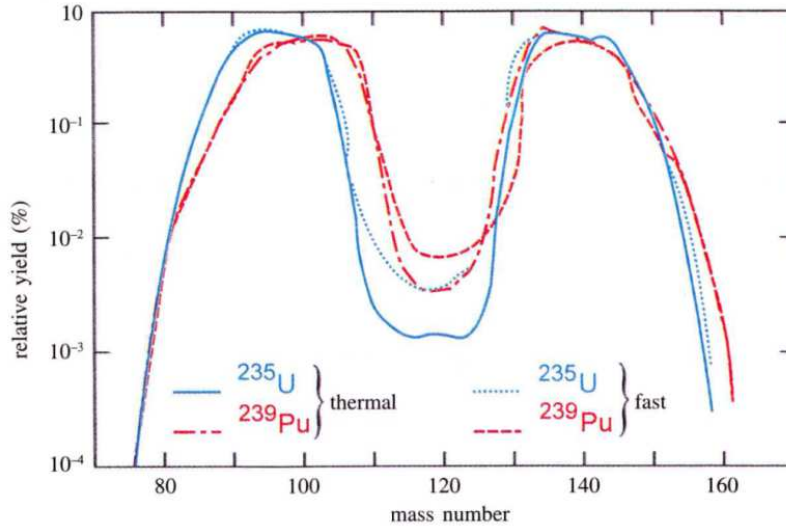


Figure 3-3 : Taux de production relatifs des produits de fission pour l'235U et le 239Pu et pour des flux de neutrons thermique et rapide [31]

IA		IIA																		IIIB	IVB	VB	VIB	VIIIB	
H																							He		
Li	Be																	B	C	N	O	F	Ne		
Na	Mg	IIIA	IVA	VA	VIA	VIIA	VIII				IB	II B	Al	Si	P	S	Cl	Ar							
K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr								
Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe								
Cs	Ba	La	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn								
Fr	Ra	Ac																							
			Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu									
			Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr									

FPs in solid solution

FPs forming metallic precipitates

FPs forming oxide precipitates

Gases and volatile FPs

Figure 3-4 : Principaux produits de fission et leur état chimique [31]



	Element	PWR UO <sub>2</sub>	PWR MOX	FR (U,Pu)O <sub>2</sub>
<b>FPs in solid solution</b>	Y	3.4	1.7	1.9
	La	5.9	5.7	5.6
	Ce	11.6	10.7	11.4
	Pr	5.4	5.1	4.8
	Nd	18.9	17.0	15.5
	Pm	0.3	0.4	1.2
	Sm	3.3	3.8	3.4
	Eu	0.8	1.1	0.6
	Gd	0.7	0.8	0.4
<b>Total FPs in solid solution</b>		<b>50.2</b>	<b>46.3</b>	<b>45</b>
<b>FPs forming oxide precipitates</b>	Rb	2.6	1.5	1.5
	Cs	13.6	15.9	20.1
	Sr	6.1	3.2	3.6
	Ba	8.2	8.0	6.8
	Zr	25.7	18.5	19.2
	Nb	0.0	0.0	0.2
<b>Total FPs oxide precipitates</b>		<b>56.2</b>	<b>47.1</b>	<b>52</b>
<b>FPs forming metallic precipitates</b>	Mo	23.5	22.2	21.3
	Tc	5.4	5.6	5.5
	Ru	15.7	19.4	22.0
	Rh	2.7	4.9	5.8
	Pd	10.1	18.0	13.8
	Ag	0.5	1.0	1.3
	Cd	0.7	1.6	1.0
	In	0.0	0.0	0.1
	Sn	0.3	0.5	0.5
	Sb	0.1	0.1	0.2
Te	2.6	2.8	3.5	
<b>Total FPs metallic precipitates</b>		<b>61.6</b>	<b>76.0</b>	<b>75</b>
<b>Gases and volatile FPs</b>	Kr	2.8	1.6	1.8
	Xe	27.4	27.0	23.6
	Br	0.2	0.1	0.1
	I	1.1	1.5	1.7
<b>Total gases and volatile FPs</b>		<b>31.5</b>	<b>30.3</b>	<b>28</b>

**Tableau 3-1 : Taux de production moyen (%) des produits de fission dans un oxyde UO<sub>2</sub> et MOX à 60 GWd/t (spectre thermique) et dans un oxyde (U,Pu)O<sub>2</sub> à 10 at % (spectre rapide) [31]**

Suivant leur état chimique, le comportement de ces produits de fission diffère tout comme leur impact sur le combustible

- **Les produits de fission solides**

Les produits de fission solides ont la propriété d'être largement miscibles dans la matrice combustible en occupant un site d'actinide et par conséquent migrent difficilement dans celui-ci. Ceux-ci entraînent une diminution de la conductivité thermique du combustible. De plus, la

valence de l'uranium et du plutonium étant de +4, la production de terres rares de valence +3 se traduit par une augmentation du potentiel d'oxygène.

- **Les produits de fission formant des précipités d'oxyde**

En plus de la formation d'oxydes simples, il peut se former des composés de structure pérovskite (Ba, Sr, Cs)(Zr, U, Pu, Mo, TR)O<sub>3</sub> (TR pour Terres Rares).

- **Les produits de fission formant des précipités métalliques**

Les précipités se forment généralement à hauts taux de combustion et à hautes températures. Ceux-ci sont principalement localisés dans la région centrale du combustible et dans une zone à mi-rayon. Les produits de fission métalliques les plus abondants sont Mo, Ru, Tc, Rh et Pd. Ces précipités peuvent se retrouver à l'état liquide dans la région centrale du combustible. Ceci explique pourquoi il est alors possible de trouver ces éléments sous forme de lingots dans la région centrale.

- **Les produits de fission volatiles**

Les produits de fission volatiles peuvent être à l'état solide ou liquide en périphérie du combustible mais sont en grande partie gazeux dans la zone centrale où la température est plus élevée. Ceux-ci ont la particularité de migrer facilement, axialement et radialement, vers la périphérie du combustible. Certains d'entre eux comme le tellure et l'iode entrent en jeu dans des effets de corrosion gaine. Le produit de fission volatile le plus abondant est le césium, celui-ci peut former des composés dont les plus stables sont CsI et Cs<sub>2</sub>Te à faible taux de combustion et CsI et Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> à haut taux de combustion. La dissociation de Cs<sub>2</sub>Te à haut taux de combustion entraîne une augmentation d'activité Te importante participant aux réactions de corrosion dans le cas des RNR. Il est à noter également la formation de Cs<sub>2</sub>UO<sub>4</sub> qui contribue notamment au gonflement du combustible et donc aux interactions mécaniques entre combustible et gaine.

- **Les produits de fissions gazeux**

Les gaz de fission (xénon et krypton) jouent un rôle capital dans le comportement de l'élément combustible. Non solubles dans ce dernier, ceux-ci provoquent un gonflement du combustible lorsqu'ils sont encore contenus dans la matrice, ce qui peut entraîner une poussée des pastilles sur la gaine. Une fois ces gaz relâchés, ils participent à l'augmentation de la pression à l'intérieur de l'élément combustible. Une différence majeure entre REP et RNR est le taux de relâchement de ces produits de fission gazeux dans le volume libre de l'aiguille. Lorsqu'un peu moins de 10% de ces gaz sont relâchés dans le cas d'un REP, c'est presque la totalité qui est relâchée dans un RNR. C'est pourquoi les aiguilles des RNR possèdent des vases d'expansion beaucoup plus volumineux que ceux des REP. Dans le cas des RNR, la production de ces gaz

est estimée à 0,23 atome de xénon par fission et à 0,02 atome de krypton par fission. Ces valeurs diffèrent selon le combustible utilisé, le taux de combustion et le flux neutron [31].

### 3.3.2 La migration des produits de fission

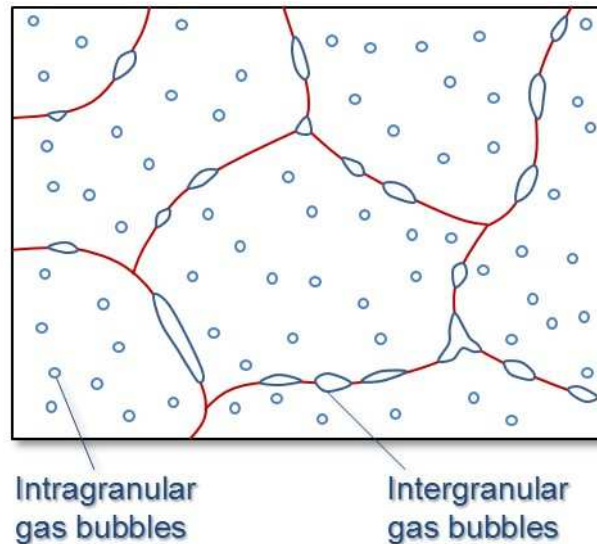
Sous l'effet du gradient thermique important au sein du combustible, les produits de fission sont amenés à migrer à l'intérieur de celui-ci principalement par diffusion thermique. Cette diffusion dans la direction du gradient thermique est rendue plus ou moins difficile en fonction de la solubilité des produits de fission dans la matrice combustible.

Les produits de fission miscibles dans le réseau cristallin (remplacement d'un site actinide par un produit de fission) migrent très difficilement. Le produit de fission se propage de proche en proche au sein du réseau cristallin. Ce processus est très lent dû à la faible mobilité des ions même s'il est facilité par la présence de lacunes au sein du combustible [40].

La migration des produits de fission gazeux et volatiles est bien plus importante. Non solubles dans la matrice combustible, trois régimes de diffusion se distinguent, ces derniers dépendant principalement de la température :

- en dessous de 1000°C, le coefficient de diffusion est indépendant de la température et est fonction du taux de fission
- entre 1000 et 1400°C, la diffusion des atomes est liée à la fois à la température locale du combustible et au taux de fission
- au-delà de 1400°C, la diffusion est uniquement thermique

Via cette diffusion, les atomes migrent à l'intérieur du combustible et forment des petites bulles intragranulaires, ces dernières pouvant fusionner entre elles. Elles vont notamment être responsables d'un gonflement du combustible. En effet, le volume de la bulle formée occupe un volume plus important que celui des deux bulles initiales. Certaines d'entre elles sont détruites par collision avec un fragment de fission donnant lieu à une redissolution des atomes. La majorité de celles-ci et des atomes gazeux migrent à la périphérie du grain combustible jusqu'au joint de grain où elles peuvent fusionner formant des bulles intergranulaires plus grosses comme illustré sur la Figure 3-5.



**Figure 3-5 : Bulles intragranulaires et leur évolution en bulles intergranulaires au niveau du joint de grain [41]**

Leur connexion les unes aux autres forme alors un réseau de transport jusqu'à la surface du combustible permettant l'agglomération ou même le rejet de produits de fission en périphérie du combustible. Ce rejet de gaz dans le volume libre de l'élément combustible suit une loi de Darcy [42] décrite par :

$$\vec{q} = -\frac{\kappa}{\mu} \overrightarrow{\text{grad}} P \quad (3.1)$$

Avec  $\vec{q}$  la vitesse de Darcy,  $\kappa$  la perméabilité du combustible,  $\mu$  viscosité des gaz de fission et  $P$  la pression des gaz de fission.

Lorsque l'interconnexion jusqu'à la surface libre du combustible est réalisée, le relâchement des produits de fission peut être brutal. Par exemple, lorsqu'une rupture de gaine est présente, le relâchement de bouffées gazeuses violentes est généralement constaté lors d'une variation brutale de puissance. Ces bouffées violentes sont interprétées comme une interconnexion soudaine jusqu'à la surface du combustible liée à l'apparition de nouvelles craquelures [31].

D'autres mécanismes sont également à l'origine de la migration des produits de fission en dehors du combustible : le recul et le *knockout*.

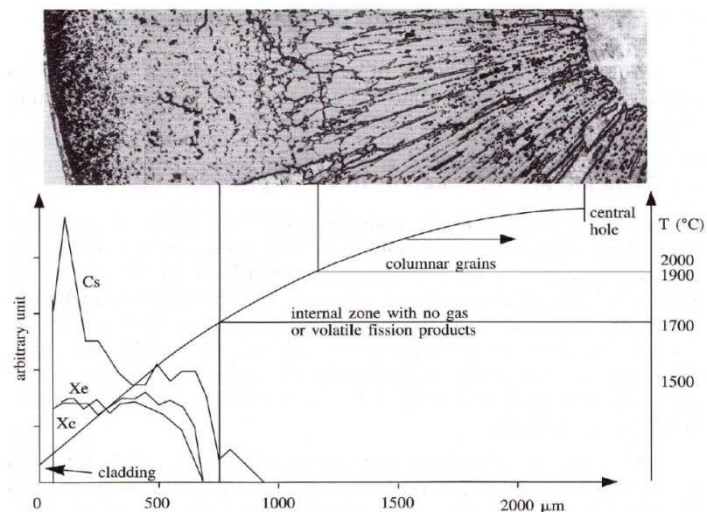
- **le recul:** Les fragments de fission sont produits avec une certaine énergie cinétique transférée à la matrice combustible sur une distance d'environ 6-8  $\mu\text{m}$ . Lorsque que le fragment est produit suffisamment proche de la surface du combustible, celui-ci peut alors être éjecté du combustible dans l'intervalle combustible-gaine. Le volume concerné par ce procédé étant très faible par rapport au volume total du combustible, la contribution de l'émission par recul est par conséquent très peu significative.

- le **knockout** : les fragments de fission, par collisions élastiques dans le combustible, peuvent engendrer une cascade de collisions. Un produit de fission, initialement à l'état stationnaire, peut donc subir cette cascade et être éjecté s'il se trouve à proximité de la surface du combustible.

Ces deux mécanismes de recul et de *knockout* semblent minoritaires (moins de 1%) dans le rejet des produits de fission gazeux dans le volume libre de l'aiguille [43].

### 3.3.2.1 La migration radiale

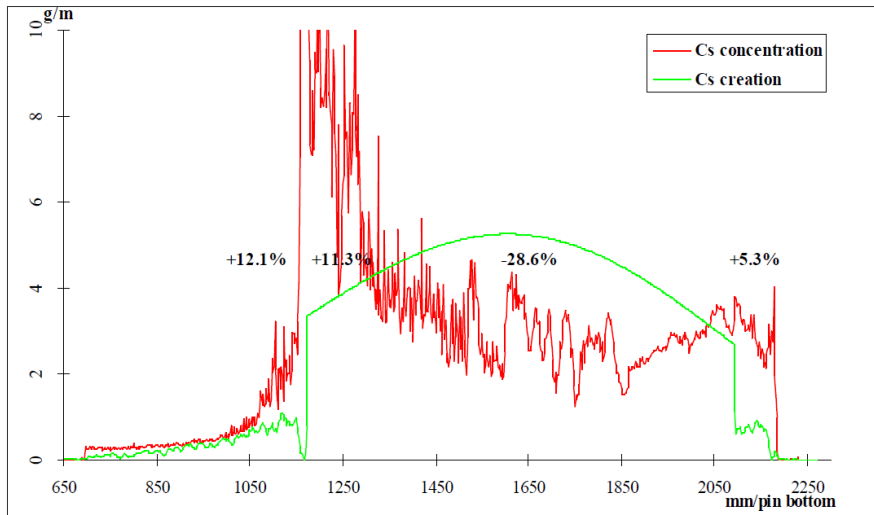
A partir d'un seuil de température d'environ 1200°C, les produits de fission volatiles ont tendance à se comporter comme des produits de fission gazeux et migrent en sens inverse du gradient thermique, en périphérie des pastilles combustible. Dans les RNRs, cette migration est également valable pour certains produits de fission comme le palladium ou des oxydes comme  $Cs_2MoO_4$  et  $MoO_3$  que l'on retrouve dans le Joint Oxyde Gaine (JOG) [44]. Le même comportement est observé pour des composés de baryum et de cadmium. Cette migration est illustrée en Figure 3-6.



**Figure 3-6 : Aspect du combustible et profil radial des gaz de fission et du césium dans un RNR-Na à 7% de taux de combustion [31]**

### 3.3.2.2 La migration axiale [45]

Comme pour la migration radiale, les produits de fission gazeux et volatiles se déplacent des zones chaudes vers les zones les plus froides, ce qui permet d'observer une migration vers les extrémités du crayon combustible. Cette dernière s'effectue à la fois par diffusion au sein du combustible mais également le long du trou central ou de l'espace libre entre le combustible et la gaine. La migration de l'iode et du tellure sont notamment responsable d'une corrosion accrue dans les zones extrêmes de l'aiguille combustible. La Figure 3-7 illustre la migration du césium dans une aiguille RNR-Na à haut taux de combustion.



**Figure 3-7 : Distributions axiales de création et de répartition du césium dans une aiguille RNR-Na à taux de combustion élevé (23% FIMA) [31]**

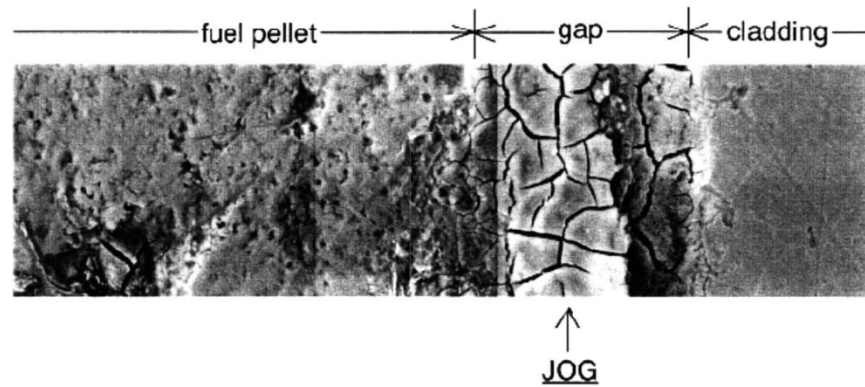
### 3.3.3 Le joint oxyde gaine (JOG) [37], [45]–[47]

A faible taux de combustion, l'espace entre gaine et combustible est rempli d'hélium rapidement mélangé aux produits de fission gazeux. En raison du gonflement du combustible, cet intervalle diminue sans jamais se refermer complètement à cause de la rugosité des surfaces (quelques  $\mu\text{m}$ ).

Pour des taux de combustion de l'ordre de 7-8% FIMA, le relâchement important de produits de fission mène à une diminution du volume occupé par les pastilles. L'intervalle combustible-gaine se rouvre pour être comblé par les produits de fission s'échappant du combustible : c'est la formation du JOG. La composition du JOG est fonction de plusieurs paramètres comme la température, le potentiel en oxygène ainsi que l'accumulation des produits de fission suite à leur migration. L'épaisseur du JOG varie selon le gonflement du combustible entre 150 et 300  $\mu\text{m}$  et celui-ci se forme prioritairement dans les zones où la température est la plus élevée.

Le JOG est principalement composé de molybdène, de césium et d'oxygène sous forme  $\text{Cs}_2\text{MoO}_4$ . D'autres produits de fission en plus petites quantités sont également présents (Ba, Zr, Pd, Cd, Te, I). Le JOG ne contient pas de matière fissile.

Le JOG représenté en Figure 3-8 joue un rôle dans le comportement de l'aiguille combustible. En effet, la conductivité thermique du  $\text{Cs}_2\text{MoO}_4$  est plus faible que celle du combustible mais plus importante que celle des produits de fission gazeux. Ainsi la présence du JOG assure un meilleur transfert thermique qu'en présence de gaz dans l'espace gaine combustible. De plus, en cas de contraintes fortes entre le combustible et la gaine, la migration axiale des produits de fission dans le JOG permet de réduire cette contrainte.



**Figure 3-8 : Illustration du JOG [48]**

## 3.4 Les ruptures de gaines

### 3.4.1 Evolution du combustible et conséquences sur la gaine

Comme évoqué dans les paragraphes précédents, l'irradiation des aiguilles combustible entraîne d'importantes modifications sur la matrice  $(U,Pu)O_2$  dès le début de l'irradiation comme à taux de combustion élevé. Certaines de ces modifications ont un impact direct sur la gaine combustible avec comme conséquence possible l'apparition d'une perte d'étanchéité de cette dernière. En effet, la production de produits de fission et l'apparition de bulles de gaz entraînent rapidement un gonflement du combustible pouvant exercer une contrainte forte sur la gaine. Le cyclage en puissance conduit également à des discontinuités dans ces contraintes, fragilisant d'autant plus une gaine déjà éprouvée.

L'évolution des propriétés locales de la matrice combustible (conductivité thermique, température, rapport O/M) faisant suite au réagencement de celle-ci (migration du plutonium, de l'oxygène et des porosités) influe directement sur l'état chimique des produits de fission ainsi que sur leur migration au sein de la pastille. Les produits de fission, principalement gazeux et volatiles, migrent avant d'être relâchés en partie ou en quasi-totalité (xénon et krypton) dans les vases d'expansion ou dans le JOG lorsque le taux de combustion atteint 7-8% FIMA [8]. La présence de certains produits de fission comme l'iode et le tellure au contact de la gaine engendre une corrosion qui peut, elle aussi, participer à l'apparition d'une perte d'étanchéité, en plus des contraintes mécaniques. L'augmentation des d.p.a. avec le taux de combustion contribue également à la fragilisation de la gaine combustible.

### 3.4.2 Les différentes ruptures de gaine [19], [30], [49]

L'évolution du combustible et les différentes contraintes sur la gaine énoncées ci-dessus peuvent être à l'origine de ruptures de gaines. L'expérience acquise suite aux ruptures de gaine à PHENIX ou bien encore via les programmes EROS<sup>4</sup> et VOLGA<sup>5</sup> a permis de distinguer différents type de ruptures (pas de rupture de gaine sur SUPERPHENIX).

#### 3.4.2.1 Les ruptures de fabrication

Les ruptures de fabrication sont majoritairement des ruptures le plus souvent liées à un défaut au niveau de la soudure du bouchon inférieur ou supérieur. Ces ruptures apparaissent le plus souvent assez rapidement après le début de l'irradiation mais peuvent également se déclarer plus tard. La position de la perte d'étanchéité (bouchon inférieur ou supérieur) influe sur l'évolution de la rupture. D'autres ruptures de fabrication peuvent être liées à une hétérogénéité dans le métal de la gaine. Celles-ci sont plus rares et se manifestent après une longue durée d'irradiation.

##### 3.4.2.1.1 Les ruptures au niveau du bouchon supérieur

En cas de pénétration du sodium dans l'aiguille suite à une rupture primaire au niveau du bouchon supérieur, l'écoulement de celui-ci le long de la colonne fissile est facilité par gravité. Le sodium réagit alors avec le combustible pour former une couche d'uranoplutonate de sodium : c'est la réaction oxyde-sodium (ROS). Celle-ci est explicitée plus en détails dans la section 3.4.3 qui lui est dédiée. Le développement de la couche d'uranoplutonate de sodium, moins dense que l'oxyde combustible, en périphérie du combustible peut être amené à engendrer une forte contrainte mécanique sur la gaine pouvant entraîner une rupture secondaire. Il convient cependant de distinguer les deux situations où l'espace combustible-gaine est présent ou bien refermé, la ROS étant facilitée par un espace combustible-gaine disponible comme détaillé plus amplement dans la section 3.4.3.

##### 3.4.2.1.2 Les ruptures au niveau du bouchon inférieur

Les ruptures au niveau du bouchon inférieur sont moins pénalisantes en raison d'une pénétration du sodium dans l'aiguille plus difficile. Un équilibre des pressions entre les gaz retenus dans l'espace libre de l'aiguille et le sodium s'établit. Le sodium ne progresse pas limitant ainsi la ROS.

---

<sup>4</sup> Etude Réaction Oxyde Sodium : programme d'irradiations d'aiguilles combustible dans les années 1970 pour l'étude des ruptures de gaine

<sup>5</sup> éVOLution des ruptures de GAine : programme d'irradiations d'aiguilles combustible lancé en 1978 pour l'étude des corrélations entre les ruptures de gaine et leur évolution



### 3.4.2.2 Les ruptures de fin de vie

Les ruptures de fin de vie interviennent suite à l'évolution du combustible présenté dans la section 3.2. Les fortes contraintes mécaniques sur la gaine liée au gonflement du combustible et à la pression interne des gaz de fission ainsi que sa corrosion par les produits de fission volatiles fragilisent fortement la gaine qui peut alors perdre son étanchéité. Au-delà des contraintes liées à l'évolution du combustible, la dégradation des propriétés mécaniques de la gaine elle-même en raison d'un nombre de d.p.a. important participe également à sa fragilisation et à la rupture de fin de vie.

### 3.4.3 La réaction oxyde-sodium (ROS) [50], [51]

Si la réaction oxyde-sodium n'est pas responsable de l'apparition de ruptures de gaines primaires, elle peut en revanche être la cause de son aggravation ou de l'apparition de ruptures secondaires. L'entrée de sodium dans l'aiguille combustible suite à une rupture primaire de taille suffisante permet à celui-ci de réagir avec le combustible formant ainsi une couche d'uranoplutonate de sodium  $\text{Na}_3(\text{U,Pu})\text{O}_4$ . En complément de l'utilisation de l'oxygène local, la migration de l'oxygène évoquée dans la section 3.2.3 permet d'entretenir la réaction dans un combustible sous-stœchiométrique. Plusieurs paramètres influent sur le développement de la ROS :

- **la taille de la rupture** : de façon assez intuitive, une large ouverture dans la gaine entraîne une pénétration de sodium et une ROS plus importantes. A l'inverse, une simple fissuration de la gaine combustible ne se traduit pas nécessairement par une entrée de sodium.
- **la position de l'ouverture sur la gaine** : un défaut au-dessus de la colonne fissile facilite la ROS avec un écoulement de sodium par gravité. Un défaut en bas de la colonne fissile rend difficile la ROS puisque la progression du sodium dans l'aiguille est contrainte par l'équilibre des pressions entre les gaz à l'intérieur de l'aiguille et le sodium.
- **la température** : la vitesse de la ROS augmente avec la température. En revanche, une décomposition des produits de réaction est observée à partir de  $1100^\circ\text{C}$  entraînant globalement un ralentissement de celle-ci. Au-delà de  $1400^\circ\text{C}$ , la décomposition est totale.
- **le taux de combustion** : la vitesse de réaction augmente de manière exponentielle avec le taux de combustion.
- **La présence d'un jeu combustible – gaine** : En début d'irradiation, le jeu est grand, la pénétration de sodium et la ROS sont facilités. Le jeu disponible permet d'absorber l'expansion volumique liée aux produits de réaction. Lorsque le jeu est étroit, la

pénétration de sodium et la ROS sont plus difficiles mais son développement exerce très rapidement une contrainte mécanique sur la gaine combustible pouvant aboutir à une rupture secondaire.

- **la diffusion du sodium** [52] : la vitesse de réaction est directement liée à la vitesse de diffusion du sodium au travers de la couche de produits de réaction déjà créée.
- **la disponibilité en oxygène** : l'entretien de la ROS dépend de l'oxygène disponible, ce dernier migrant de la zone chaude du combustible vers la périphérie.

La formation de cette couche d'uranoplutonate de sodium en périphérie du combustible suite à une rupture primaire a un impact fort sur l'évolution de l'aiguille [53] :

- **Augmentation de la température dans le combustible** : la migration de l'oxygène vers la zone de réaction permet d'entretenir celle-ci. Cette migration fait apparaître des lacunes dans la matrice combustible qui participent à la dégradation de la conductivité thermique de la pastille et donc à son échauffement. Cette élévation de température a pour conséquence d'accentuer la migration du plutonium dans la zone centrale. Le point de fusion dans cette zone diminue et la fusion à cœur devient alors possible. La sous stœchiométrie de la zone centrale va également dans le sens d'un abaissement du point de fusion. De plus, la couche d'uranoplutonate de sodium créée en périphérie possède une conductivité thermique bien inférieure à celle de l'oxyde combustible, ce qui participe grandement à l'élévation de température interne du combustible.
- **Augmentation du volume des pastilles** : la densité de l'uranoplutonate de sodium étant deux fois plus faible que celle du combustible initial, la ROS entraîne une expansion volumique liée à la formation des produits de réaction. De plus, la ROS engendre des défauts supplémentaires dans le réseau cristallin. Cela se traduit par une augmentation du paramètre cristallin ainsi que du volume de la matrice combustible.

L'augmentation du volume des pastilles entraîne alors une diminution de l'espace libre entre le combustible et la gaine et également une réduction du trou central. Lorsque les espaces libres ne suffisent plus à compenser l'expansion volumique, une poussée mécanique s'exerce sur la gaine combustible pouvant engendrer une rupture de gaine secondaire et l'ouverture plus importante d'une rupture éventuellement déjà existante.

#### 3.4.4 Le relâchement des produits de fission dans le sodium

Les différents rejets de produits de fission sont présentés dans ce paragraphe en fonction du type de rupture.

#### 3.4.4.1 Rupture de fabrication au niveau du bouchon supérieur

Sur ce type de rupture, il a été constaté notamment via les essais du programme EROS une augmentation progressive des signaux gaz avec l'irradiation, donnant lieu à des émissions de bulles de gaz de plus en plus rapprochées dans le temps. Ces bouffées sont constatées sur les montées de puissance, et non sur les descentes. Ce comportement peut être expliqué par une pénétration du sodium dans le jeu combustible gaine formant un joint de sodium ralentissant la sortie des gaz de fission. Le sodium réagit ensuite avec le combustible, ce qui provoque un échauffement dû à la détérioration des propriétés thermiques du combustible. Le relâchement des gaz devient alors plus important.

#### 3.4.4.2 Rupture de fabrication au niveau du bouchon inférieur

Ces ruptures sont caractérisées par une émission de bouffées de gaz de forte intensité de manière aléatoire lors de variations de puissance. Ce comportement s'explique par un fonctionnement de type « cloche à plongeur ». Un équilibre de pression se crée entre les gaz retenus dans l'aiguille au-dessus du niveau de la perte d'étanchéité et le sodium. Les contractions et dilatations des gaz pendant les variations de puissance entraînent ainsi un relâchement de bouffées gazeuses.

#### 3.4.4.3 Rupture au niveau de la colonne fissile

Les ruptures au niveau de la colonne fissile comme lors d'une rupture de fin de vie sont caractérisées par l'émission d'une bouffée très importante liée à la dépressurisation des gaz accumulés à l'intérieur de l'aiguille. Une émission fluctuante avec une superposition de bouffées notamment sur les variations de puissance est ensuite constatée. L'apparition de produits de fission de période courte est caractéristique de ce type de rupture avec vraisemblablement une éjection de sodium entraînant ces produits de fission sur les variations de puissance. Il existe également des périodes où le relâchement peut être nul. Ces périodes s'expliqueraient par des produits de réaction faisant office de bouchon et colmatant ainsi la fuite.

### 3.5 Conclusion

Dès les premiers instants de l'irradiation, les pastilles de combustible subissent de nombreuses modifications influant directement sur le comportement de l'aiguille. Sous l'effet d'un gradient de température important, une redistribution du plutonium et de l'oxygène s'opère accompagné d'un réagencement de la matrice combustible. Ce réagencement modifie les propriétés thermiques du combustible. Les produits de fission, principaux responsables du gonflement du combustible, migrent dans le combustible plus ou moins facilement en fonction de leur état chimique. Cette migration s'effectue principalement par diffusion et se trouve influencée par le gradient de température, ainsi que par le réagencement de la matrice combustible. Ainsi, lors

d'une rupture de gaine initiée soit par un défaut de fabrication, soit par une sollicitation trop importante de la gaine (contraintes mécaniques, corrosion, d.p.a.), les produits de fissions (principalement gazeux et volatiles) ayant migrés en périphérie du combustible sont amenés à être relâchés dans le sodium caloporteur. Le mode d'émission de ces produits de fission hors de l'aiguille diffère selon le type de rupture, son emplacement, son ouverture ainsi que la faculté du sodium à pénétrer dans l'aiguille. On retiendra l'importance du suivi des émissions des gaz de fission (xénon et krypton) pour la détection de rupture de gaine, notamment les premières bouffées. L'aggravation des pertes d'étanchéité situées le long de la colonne fissile en rupture ouverte donne également lieu au rejet d'autres produits de fission. L'émission de produits de fission par recul, notamment de période courte, est favorisée par l'ouverture de la brèche. Si les isotopes de l'iode et du brome émetteurs de neutrons différés sont suivis à l'aide des mesures DND, les autres produits de fission migrant en périphérie du combustible susceptibles d'être entraînés par le sodium ne sont aujourd'hui pas suivis.

# 4 ETUDES THEORIQUES PAR SIMULATIONS MONTE- CARLO

## 4.1 Introduction

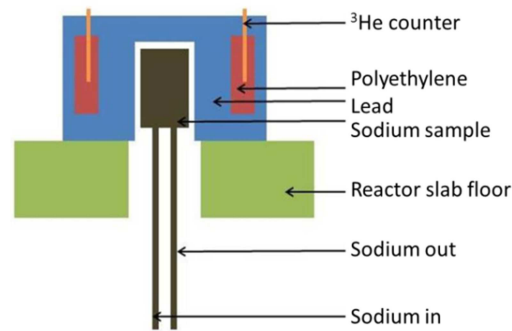
Après avoir étudié la phénoménologie des ruptures de gaine et identifié les principaux produits de fission d'intérêt dans le chapitre précédent, deux voies d'amélioration concernant l'instrumentation nucléaire pour la détection de rupture de gaine sur ASTRID et plus généralement pour la filière réacteur sodium sont explorées ici par simulations Monte-Carlo. Premièrement, une optimisation des blocs DND existant en termes de rapport signal sur bruit est proposée via l'introduction de graphite supprimant ainsi la composante de bruit photoneutron dont l'impact négatif a été constaté par le passé. Deuxièmement, la faisabilité d'une nouvelle mesure implémentant une spectrométrie gamma hauts taux de comptage sur le sodium primaire est étudiée. Si le rejet des gaz rares de fission apparaît prépondérant lors de l'apparition d'une rupture de gaine, une telle spectrométrie n'entraînerait aucune restriction sur les produits de fission émetteurs gamma pouvant être détectés et permettrait de gagner en richesse et en précocité dans le diagnostic grâce à la suppression de l'étape de dégazage implémentée sur le LRG gaz.

## 4.2 Optimisation du poste DND

### 4.2.1 Principe de la mesure DND

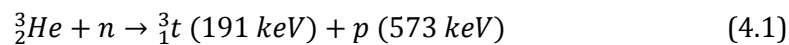
#### 4.2.1.1 Le signal neutron

Les prélèvements de sodium sont réalisés au niveau de la cuve primaire et plus particulièrement au-dessus des assemblages combustibles dans le cas de la LRG. Le sodium transite jusqu'au poste de mesure via une ligne de prélèvement. Ce poste est composé d'une capacité cylindrique de sodium de quelques litres entourée d'une épaisseur de blindage en plomb et d'une épaisseur de modérateur en polyéthylène. Les compteurs proportionnels  $^3\text{He}$ , dont le nombre diffère selon les conceptions (voir section 2.3.2), sont placés au sein de l'épaisseur de polyéthylène et assurent la mesure neutronique comme illustré sur la Figure 4-1.



**Figure 4-1 : Schéma de principe du poste DND**

L'utilisation de polyéthylène comme modérateur permet de modérer les neutrons afin de maximiser le taux de réaction dans le compteur en raison d'une section efficace de réaction  $^3\text{He}(n,p)$  (voir (4.1)) croissante en l'inverse de la vitesse pour atteindre 5314 barns à 25 meV [23].



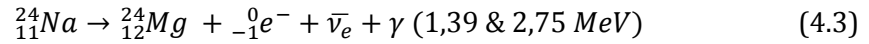
#### 4.2.1.2 Le bruit lié aux photoneutrons

Les différents retours d'expérience montrent que les signaux DND sont dégradés par la présence de photoneutrons [21], [54], [55]. Ce bruit de fond neutronique est lié à la réaction photonucléaire  $D(\gamma,n)$  qui a lieu au sein du polyéthylène où les gamma d'énergie supérieure à 2,2 MeV [56] interagissent avec le deutérium présent naturellement dans le polyéthylène [57]:



La quantité de deutérium dans le polyéthylène est très faible (environ 0,02% at.) et la section efficace de réaction est peu élevée (inférieure à 1,5 mbarns pour une énergie gamma en dessous de 2,7 MeV). Néanmoins, l'activité très importante du produit d'activation  $^{24}\text{Na}$  et son émission

gamma à 2,75 MeV (c.f. (4.3)) avec une intensité de presque 100% entraîne une production de photoneutrons ayant un impact non négligeable sur le faible signal neutronique issu des produits de fission émetteurs de neutrons différés.



Cette perturbation, évolutive avec la puissance du réacteur, représente un réel souci pour l'exploitant. Afin de minimiser l'impact de cette perturbation, le flux gamma est réduit via l'utilisation d'un blindage de plomb en amont de l'épaisseur de polyéthylène. Comme nous le verrons par la suite, un trop grand blindage de plomb affecte également le signal neutron issu des produits de fission. De plus, l'ajout de plomb augmente la distance entre le pot de sodium et le détecteur  ${}^3\text{He}$  réduisant de fait l'efficacité géométrique de détection. Un compromis dans la conception du poste de mesure est donc nécessaire.

#### 4.2.1.3 Le bruit de fond gamma

Une autre source de perturbation est liée au débit de dose gamma reçu par le compteur  ${}^3\text{He}$  en raison de l'activité du sodium. Un débit de dose excessif au niveau du détecteur entraîne un phénomène d'empilement, générant des événements gamma au-dessus du seuil de détection des impulsions induites par le proton et le triton de la réaction  ${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$ . Cette perturbation est limitée via le blindage en plomb limitant le débit de dose gamma incident.

#### 4.2.1.4 La pollution des gaines

La fabrication des aiguilles combustible est toujours source d'une légère pollution en matière fissile déposée sur les gaines combustible. Cette pollution, sous l'impact du flux neutronique, est responsable de la production et d'un relâchement de produits de fission dans le sodium primaire. Parmi eux, les émetteurs de neutrons différés contribuent à la formation d'un signal neutronique de fond parasite au niveau du pot de mesure DND. Cette pollution était de l'ordre d'un coup par seconde sur SUPERPHENIX [21].

### 4.2.2 Motivations de l'optimisation

Les différents retours d'expérience sur l'utilisation des postes DND nous indiquent des perturbations non négligeables liées aux différents types de neutrons parasites et particulièrement celle provenant des photoneutrons. Comme évoqué dans le chapitre 2, la gestion de cette perturbation nécessite l'implémentation de compensations.

Une optimisation du poste de mesure en termes de minisation des bruits parasites par rapport au signal permettrait une détection et un diagnostic associé plus rapide et plus fiable. L'étude d'optimisation est mise en œuvre au moyen de calculs Monte-Carlo par l'utilisation du code MCNPX (version 2.0.7) et porte à la fois sur la géométrie du poste, les matériaux utilisés ainsi que sur l'électronique de détection.

### 4.2.3 Optimisation du poste de mesure par simulation Monte-Carlo

Dans le cadre de cette étude d'optimisation, on se place dans le cas d'un poste de mesure relativement standard. Le compteur proportionnel  $^3\text{He}$  utilisé ici est de type 65NH45 ( $\varnothing 25 \times 450$  mm) de la société Canberra pressurisé à 4 bars comme ceux utilisés à PHENIX et à SUPERPHENIX. Le terme source neutron de la capacité de sodium découle d'un calcul réalisé pour l'EFR<sup>6</sup> avec le programme GRENADINE<sup>7</sup> pour une rupture de gaine de  $1 \text{ cm}^2\text{.R}$  avec un temps de transit jusqu'au bloc de détection de 20 secondes et un temps de stockage dans le pot de mesure d'une capacité de 2,8 litres de 5 secondes [58].

#### 4.2.3.1 Définition des termes sources

Nous cherchons ici à évaluer la contribution de chaque produit de fission précurseur dans l'émission neutron totale au niveau du pot de sodium afin de pouvoir calculer la réponse du compteur proportionnel  $^3\text{He}$ . Comme évoqué dans le paragraphe ci-dessus, l'émission neutronique utilisée est issue de l'étude d'un bloc DND de l'EFR pour une rupture de gaine de  $1 \text{ cm}^2\text{.R}$ . Celui-ci est estimé à  $8680 \text{ n.s}^{-1}$  au niveau du pot de sodium. Cependant, afin de déterminer le spectre émis par l'échantillon de sodium, il est nécessaire de connaître quels sont les précurseurs à l'origine de ces émissions neutron. La classification des précurseurs pour un combustible type  $(\text{U,Pu})\text{O}_2$  est présentée dans le Tableau 4-1.

Groupe	Précurseur	$T_{1/2}$ (s)
1	$^{87}\text{Br}$	55,65
2	$^{137}\text{I}$	24,50
3	$^{88}\text{Br}$	16,31
4	$^{138}\text{I}, ^{93}\text{Rb}, ^{89}\text{Br}$	5,21
5	$^{94}\text{Rb}, ^{139}\text{I}, ^{85}\text{As}, ^{98\text{m}}\text{Y}$	2,37
6	$^{93}\text{Kr}, ^{144}\text{Cs}, ^{140}\text{I}$	1,04
7	$^{91}\text{Br}, ^{95}\text{Rb}$	0,42
8	$^{96}\text{Rb}, ^{97}\text{Rb}$	0,20

**Tableau 4-1 : Classification des précurseurs pour un combustible type  $(\text{U,Pu})\text{O}_2$  [59]**

<sup>6</sup> *European Fast Reactor* : projet de RNR-Na européen ayant fait l'objet d'études de conception sans atteindre la réalisation à la fin des années 1980 et durant les années 1990.

<sup>7</sup> GRENADINE est un code implémentant une méthode par éléments finis développé pour le calcul des émissions neutroniques.



Le temps de transit jusqu'au pot de sodium étant de 20 secondes, seuls les précurseurs des trois premiers groupes seront retenus ici. Ce type d'approximation figure également dans les références [60] et [61]. Pour retrouver le spectre en énergie lié à l'émission totale de  $8680 \text{ n.s}^{-1}$  au niveau du pot de sodium, il s'agit donc d'établir la proportion de neutrons issus des différents produits de fission précurseurs  $^{87}\text{Br}$ , du  $^{137}\text{I}$  et du  $^{88}\text{Br}$ . Pour cela le vecteur isotopique  $R_i^{U5}$  est calculé selon l'équation (4.4).

$$R_i^{U5} = \frac{f_i * p_i}{f_{U5} * p_{U5}} \quad (4.4)$$

Avec  $f_i$  et  $p_i$  respectivement les taux de fission et les proportions en isotopes pour un radioélément fissile  $i$  ( $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ). Ce vecteur isotopique représente le nombre de noyaux d'un radioélément  $i$  fissionnant pour une fission d'uranium 235. Le nombre moyen de neutrons retardés  $\overline{\nu\beta_j}$  issus d'un précurseur  $j$  par fission est estimé à partir du nombre de neutrons moyen par fission  $\overline{\nu}$  et de la fraction moyenne de neutrons retardés  $\beta_{ij}$  pour un précurseur  $j$  et un radioélément fissile  $i$  (équation (4.5)).

$$\overline{\nu\beta_j} = \frac{\sum_i R_i^{U5} * \overline{\nu_i}\beta_{ij}}{\sum_i R_i^{U5}} \quad (4.5)$$

La proportion entre neutrons retardés d'un précurseur  $j$  et  $k$  en sortie d'assemblage est déterminée selon l'équation (4.6).

$$\frac{A_j(t=0)}{A_k(t=0)} = \frac{\overline{\nu\beta_j}}{\overline{\nu\beta_k}} \quad (4.6)$$

Considérant le temps de transit jusqu'au pot de détection  $\Delta t_t$  ainsi que le temps  $\Delta t_s$  durant lequel le sodium reste dans la capacité, le rapport des émissions neutroniques provenant des différents précurseurs  $r_{jk}$  au niveau du pot de détection est calculé selon les équations (4.7) et (4.8). Le résultat est présenté dans le Tableau 4-2.

$$r_{jk} = \frac{\overline{DND}_j}{\overline{DND}_k} \quad (4.7)$$

$$r_{jk} = \frac{A_j(t=0) * e^{-\lambda_j \Delta t_t} * \frac{1 - e^{-\lambda_j \Delta t_s}}{\lambda_j \Delta t_s}}{A_k(t=0) * e^{-\lambda_k \Delta t_t} * \frac{1 - e^{-\lambda_k \Delta t_s}}{\lambda_k \Delta t_s}} \quad (4.8)$$

Précurseurs neutron	$r_{j^{137I}}$
$^{87}\text{Br}$	0,160
$^{137}\text{I}$	1
$^{88}\text{Br}$	0,257

**Tableau 4-2 : Ratio des émissions neutroniques des différents précurseurs (normalisé à l'iode 137)**

Considérant l'émission neutronique totale de  $8680 \text{ n.s}^{-1}$  au niveau du pot de mesure, les émissions des différents précurseurs sont calculées (équations (4.9) et (4.10)) et présentées dans le Tableau 4-3. Les spectres neutroniques de ces trois produits de fission utilisés dans MCNPX sont issus de la base de données ENDF/B-VI [62].

$$\bar{A}_{137I}^{DND} = \frac{8680}{1 + 0.160 + 0.257} \text{ n.s}^{-1} \quad (4.9)$$

$$\bar{A}_j^{DND} = r_{j^{137I}} * \bar{A}_{137I}^{DND} \quad (4.10)$$

<b>Précurseurs neutron</b>	$^{137}\text{I}$	$6123 \text{ n.s}^{-1}$
	$^{87}\text{Br}$	$982 \text{ n.s}^{-1}$
	$^{88}\text{Br}$	$1575 \text{ n.s}^{-1}$
<b>Produit d'activation</b>	$^{24}\text{Na}$	$279 \text{ TBq.m}^{-3}$

**Tableau 4-3 : Termes source**

L'activité gamma en cuve liée au sodium 24 est estimée à environ  $280 \text{ TBq.m}^{-3}$  [63]. De la même manière que pour l'émission neutronique, l'activité liée au sodium 24 au niveau du pot de mesure est calculée (Tableau 4-3). Cette activité apparaît très proche de l'activité en cuve en raison de la période du sodium 24 d'environ quinze heures. En raison de l'absence de réactions  $(\gamma, n)$  liées aux rayonnements gamma des autres produits d'activation ( $^{22}\text{Na}$ ,  $^{23}\text{Ne}$ ,  $^{20}\text{F}$ ), ces derniers ne sont pas pris en compte dans les simulations de réponses aux photoneutrons. Ils ne le seront pas également dans les simulations du débit de dose en raison de leur très faible contribution comparée à la très haute activité et aux hautes énergies gamma mises en jeu ( $1368 \text{ keV}$  et  $2754 \text{ keV}$ ).

#### 4.2.3.2 Choix du modérateur

Le polyéthylène constitue une solution de référence pour la modération des neutrons. Néanmoins, ce dernier constituant une source non négligeable de photoneutrons, son

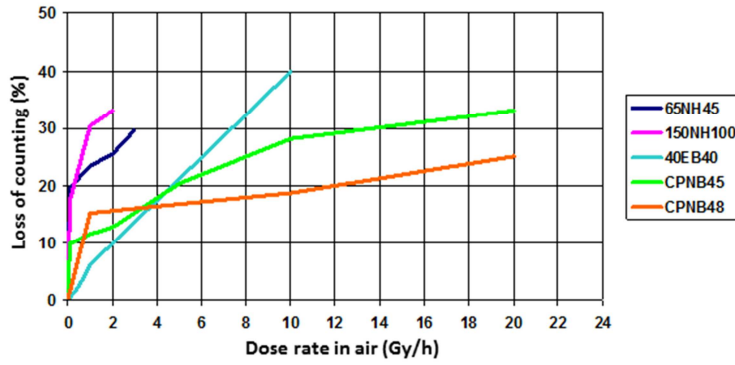
remplacement est envisagé. Le matériau de substitution doit conserver un nombre de masse faible afin de préserver un bon pouvoir modérateur. Le Tableau 4-4 présente la liste des modérateurs possibles. Le béryllium, toxique et coûteux, présente un seuil de réaction ( $\gamma,n$ ) à 1,7 MeV non adapté dans notre cas. Par conséquent, l'utilisation de carbone sous forme graphite, léger et présentant un seuil de réaction ( $\gamma,n$ ) d'environ 5 MeV [9][10], sera étudiée comme solution de remplacement du polyéthylène.

Elément	Masse atomique	Nombre de collisions
Hydrogène	1	27
Deutérium	2	31
Hélium	4	48
Béryllium	9	92
Carbone	12	119

**Tableau 4-4 : Nombre moyen de collisions nécessaires pour réduire l'énergie d'un neutron de 2 MeV à 25 meV par diffusion élastique [66]**

#### 4.2.3.3 L'électronique de détection

Un autre axe d'optimisation concerne le débit de dose gamma au niveau du compteur  $^3\text{He}$ . Si le blindage en plomb permet de limiter ce dernier et donc de limiter le phénomène d'empilement gamma (en plus de limiter la production de photoneutrons), cette protection a également un impact sur le signal neutron. Une plus grande tolérance au débit de dose permettrait de réduire le blindage en plomb et d'augmenter le signal neutron. Traditionnellement, les compteurs  $^3\text{He}$  connectés à un préamplificateur de charges permettent un fonctionnement jusqu'à environ  $10^{-1} \text{ Gy.h}^{-1}$  [12][13]. Il a été montré dans les travaux [67] que l'ajout de gaz d'appoint à l'hélium 3 de type  $\text{CO}_2$  et l'utilisation d'un préamplificateur à collecte de courant permettait d'assurer un comptage neutronique jusqu'à  $3 \text{ Gy.h}^{-1}$  dans l'air pour une perte de comptage de 30% avec un compteur de type 65NH45 comme illustré sur la Figure 4-2. La collecte des charges étant plus rapide, la probabilité d'empilement est réduite pour un débit de dose donné. Ce fonctionnement à plus haut débit de dose permet d'envisager une réduction de la protection de plomb et donc une meilleure réponse neutron.



**Figure 4-2 : Perte de comptage neutronique pour différents détecteurs connectés à un préamplificateur de courant de type BAI sous un faisceau de  $^{137}\text{Cs}$  pour une source de neutrons constante [67]**

#### 4.2.3.4 Simulations MCNPX

Les simulations sont effectuées avec le code de transport de particules Monte Carlo MCNPX 2.0.7 [69]. Les deux configurations utilisant d'une part le polyéthylène et d'autre part le graphite comme modérateur sont étudiées. La probabilité d'interaction des neutrons dans le compteur hélium 3 est assimilée au taux de réaction  $^3\text{He}(n,p)$  et est noté  $T_{n_j}$  dans l'équation (4.11) ci-dessous. Le parcours moyen des neutrons dans le gaz est estimé à l'aide d'un tally F4 pondéré par la section efficace de réaction  $^3\text{He}(n,p)$  (carte MT). Les spectres neutroniques et gamma utilisés sont issus de la base de données ENDF/B-VI. Pour les interactions photonucléaires, les sections efficaces utilisées sont extraites de ENDF/B-VI et ENDF/B-VII. Les cartes poly.01t et grph.01t sont implémentées afin de rendre compte des diffusions inélastiques des neutrons dans le polyéthylène et le graphite. Dans cette étude, trois grandeurs sont étudiées. La première d'entre elle est la réponse du compteur hélium 3 aux neutrons retardés issus des précurseurs  $S_{n_j}$  et est définie selon l'équation (4.11).

$$S_{n_j} = T_{n_j} * \bar{A}_j^{DND} * \alpha \quad (4.11)$$

Avec  $T_{n_j}$  le taux de réaction (n,p) lié aux neutrons retardés du précurseur  $j$  dans l'hélium 3,  $\bar{A}_j^{DND}$  le terme source neutron correspondant au précurseur  $j$  et  $\alpha$  l'efficacité de détection liée à l'électronique utilisée (environ 60% pour un préamplificateur de courant [70]) et au débit de dose gamma. La seconde grandeur étudiée est la réponse du détecteur à la pollution neutronique provenant d'une part des précurseurs issus de la pollution de gaine (de l'ordre d'un coup par seconde selon le REX de SUPERPHENIX [21])  $S_{po}$  et d'autre part de la contribution photoneutron  $S_{ph}$  définie selon l'équation (4.12).

$$S_{ph} = T_p * A_v * V * I_{2.75} \quad (4.12)$$

Avec  $T_p$  le taux de réaction (n,p) des photoneutrons liés à l'émission gamma du sodium 24 à 2,75 MeV,  $A_v$  l'activité volumique du sodium 24 dans le pot de mesure,  $V$  le volume du pot de sodium et  $I_{2.75}$  l'intensité de l'émission gamma à 2,75 MeV (environ 100%). La troisième grandeur d'intérêt est le débit de dose gamma vu par le détecteur hélium 3 calculé via l'énergie déposée dans le gaz (tally F6) selon l'équation (4.13)<sup>8</sup>.

$$D = Y * 1,602. 10^{-10} * A_v * I * V * 3600 \quad (4.13)$$

Avec  $D$  le débit de dose en Gy.h<sup>-1</sup> dans le gaz hélium 3,  $Y$  le dépôt énergétique en MeV.g<sup>-1</sup> par particule source (tally F6),  $A_v$  l'activité volumique du sodium 24,  $I$  l'intensité d'émission et  $V$  le volume du pot de sodium.  $D$  étant calculé à partir d'un dépôt d'énergie dans le gaz hélium 3, il est nécessaire, afin d'obtenir une comparaison pertinente, de le convertir en débit de dose équivalent dans l'air puisque ce dernier fait office de référence dans la littérature [71]. Cette correction utilise la différence de coefficients d'absorption massique entre les deux matériaux comme indiqué dans l'équation (4.14).

$$D_{3He} = D_{air} * \frac{(\mu_a/\rho)_{3He}}{(\mu_a/\rho)_{air}} \quad (4.14)$$

Avec  $D_{air}$  le débit de dose dans l'hélium 3 issu du calcul MCNPX,  $\mu_a$  le coefficient d'absorption linéique du milieu et  $\rho$  sa masse volumique.

Deux critères sont retenus afin de comparer les différentes configurations. Le premier d'entre eux est une figure de mérite (FOM) reflétant un rapport signal sur bruit au sens de la statistique poissonnienne des comptages définie comme le carré du ratio entre la réponse neutron  $\sum_j S_{n_j}$  et l'incertitude statistique liée aux parasites (photoneutrons et pollution)  $\sqrt{S_{ph} + S_{po}}$  (voir équations (4.15) à (4.18)).

$$FOM = \frac{(\sum_j S_{n_j})^2}{S_{ph} + S_{po}} \quad (4.15)$$

La détection doit remplir le critère suivant :

$$\sum_i S_{n_j} * t_{aq} > L_D \quad (4.16)$$

Avec  $t_{aq}$  le temps d'acquisition de la mesure et  $L_D$  la limite de détection définie comme :

$$L_D = k * \sqrt{(S_{ph} + S_{po}) * t_{aq}} \quad (4.17)$$

---

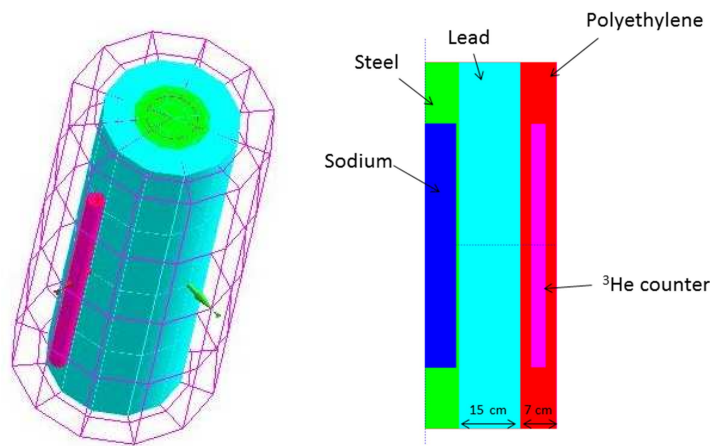
<sup>8</sup> 1 MeV.g<sup>-1</sup> = 1,602 10<sup>-10</sup> Gy

Avec  $k$  le facteur de couverture lié à l'intervalle de confiance sur la limite de détection. Il vient donc :

$$t_{aq} > \frac{k^2}{FOM} \quad (4.18)$$

La FOM est donc inversement proportionnelle au temps d'acquisition nécessaire pour assurer la détection des neutrons différés issus des précurseurs.

La Figure 4-3 illustre la modélisation du pot DND dans la configuration plomb-polyéthylène et les FOM obtenues dans cette configuration pour différentes épaisseurs de plomb et de polyéthylène sont présentées en Figure 4-4. Ces simulations montrent que la production de photoneutrons dégrade fortement la détection lorsque l'épaisseur de plomb n'est pas suffisante comme l'indique la courbe rouge sur la Figure 4-4. En revanche, une épaisseur de plomb trop importante (courbe cyan) engendre également une diminution de la FOM. Ceci s'explique par l'influence du plomb sur l'intensité du signal neutron utile comme illustré sur la Figure 4-5. Un compromis entre l'atténuation des photoneutrons et du signal neutronique utile est donc nécessaire. Il en résulte l'obtention d'une FOM maximum de  $1651 \text{ s}^{-1}$  pour des épaisseurs de plomb et de polyéthylène respectivement de 150 mm et 70 mm pour un signal neutron de **41 cps**. Le débit de dose calculé dans cette configuration est de  $7.10^{-3} \text{ Gy.h}^{-1}$  dans l'air soit largement en dessous de la limite de  $3 \text{ Gy.h}^{-1}$  liée à l'utilisation d'un préamplificateur de courant.



**Figure 4-3 : Modélisation MCNPX de la configuration plomb-polyéthylène**

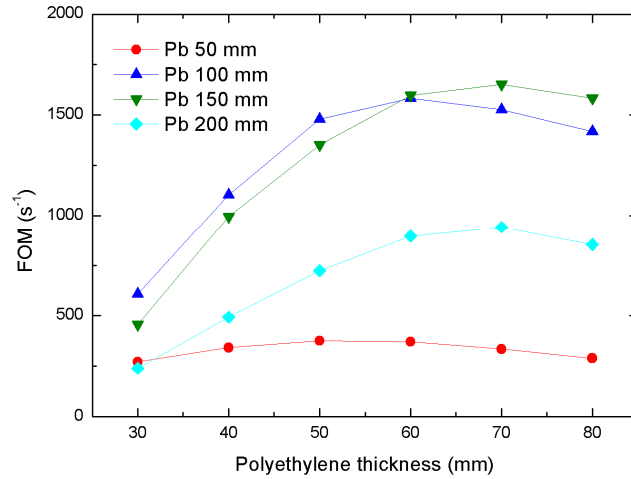


Figure 4-4 : FOM en fonction des épaisseurs de plomb et de polyéthylène

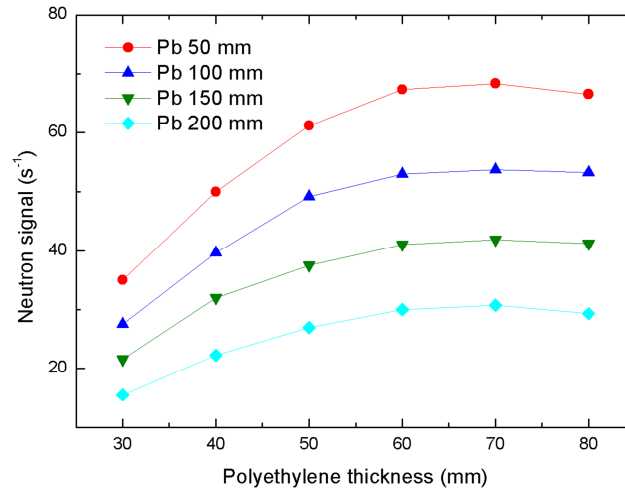
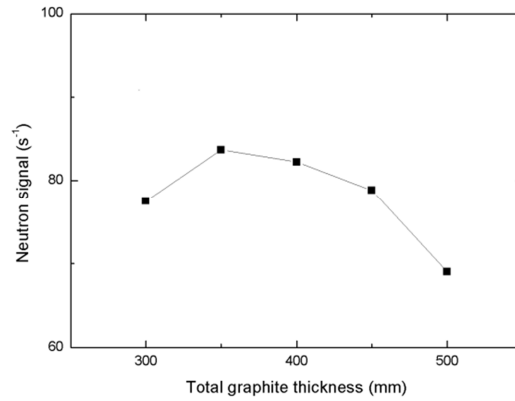


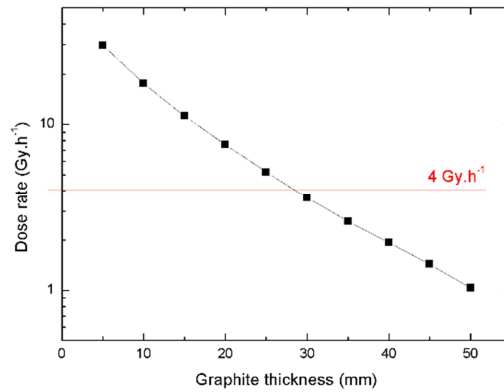
Figure 4-5 : Réponse aux neutrons retardés pour différentes épaisseurs de plomb et de polyéthylène

Concernant la configuration utilisant le graphite pour modérateur, celle-ci n'envisage pas l'utilisation de plomb. Le compteur proportionnel  $^3\text{He}$  est disposé au centre de l'épaisseur de graphite. Le pouvoir modérateur du graphite est plus faible que celui du polyéthylène mais la pollution liée aux photoneutrons n'existe plus, seul persiste le bruit lié à la pollution des gaines. Avec l'absence de bruit photoneutronique et une pollution de gaines de l'ordre de 1 cps, les courbes représentant la FOM et le signal neutronique suivent la même tendance. Comme indiqué sur la Figure 4-6, il existe une épaisseur de graphite pour laquelle la FOM et le signal neutronique est maximisé. Ce maximum résulte de la compétition entre deux facteurs que sont la quantité de graphite nécessaire afin d'assurer une modération suffisante et la distance entre le pot de sodium et le détecteur faisant chuter l'efficacité géométrique. La FOM atteint une valeur maximale de  $7056 \text{ s}^{-1}$  pour une épaisseur totale de graphite de 350 mm correspondant à un

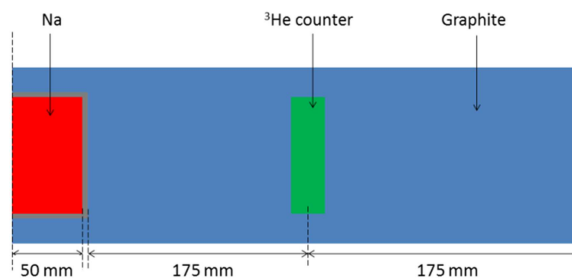
signal neutron de **84 cps** incluant les pertes de comptage liées au préamplificateur de courant et au débit de dose. Concernant ce dernier, l'épaisseur de graphite amont permet de rester en dessous de la limite de fonctionnement de  $3 \text{ Gy}\cdot\text{h}^{-1}$  dans l'air correspondant à  $4 \text{ Gy}\cdot\text{h}^{-1}$  dans l'hélium 3 comme illustré sur la Figure 4-7. L'optimisation à base de graphite proposée (Figure 4-8) permet donc d'atteindre une FOM plus de quatre fois supérieure à celle obtenue pour une configuration plomb-polyéthylène avec un signal neutronique deux fois supérieur tout en conservant un débit de dose compatible avec les limites de fonctionnement.



**Figure 4-6 : Signal neutron en fonction de l'épaisseur total de graphite**



**Figure 4-7 : Débit de dose en fonction de l'épaisseur total de graphite**



**Figure 4-8 : Géométrie du pot DND optimisé**



## 4.2.4 Validation expérimentale

### 4.2.4.1 Dispositif et mesures

Dans le but de valider les simulations dédiées au dimensionnement d'un poste de mesure basé sur un compteur  $^3\text{He}$  et un modérateur de type carbone, des essais expérimentaux ont été réalisés à SAPHIR, plateforme d'irradiation du CEA LIST. La Figure 4-9 illustre le dispositif expérimental. 75 kg de charbon anthracite sont placés dans un fût métallique de 100L au milieu duquel est positionné un compteur hélium 3 type Saint-Gobain 100He3/304/25HS.



**Figure 4-9 : Dispositif expérimental**

La longueur sensible de ce dernier est de 100 cm pour un diamètre extérieur de 25 mm avec une pressurisation de l'hélium de 3 à 4 bars. Ce compteur est connecté à un module Canberra 7820-ADS embarquant un préamplificateur de courant qui amplifie le signal et discrimine les faibles énergies (bruit électronique et impulsions gamma). Un signal TTL est généré pour les impulsions au-delà d'un seuil ajustable. Les signaux TTL sont envoyés vers un compteur durant une période d'acquisition de 5 minutes. Une source AmLi avec un taux d'émission de 42990 neutrons par seconde est placée contre le fût. En raison des similitudes entre les spectres, le spectre neutronique de cette source (Figure 4-10) est considéré comme représentatif du spectre de neutrons retardés émis par les produits de fission [72].

Le comptage neutronique durant une période de 5 minutes est représenté en fonction du seuil de discrimination sur la Figure 4-11. Au regard des changements de pentes, seules les impulsions neutrons sont considérées comme comptabilisées au-delà d'un seuil de discrimination de 400 mV. La thermalisation des neutrons par le charbon anthracite est alors mise en évidence.

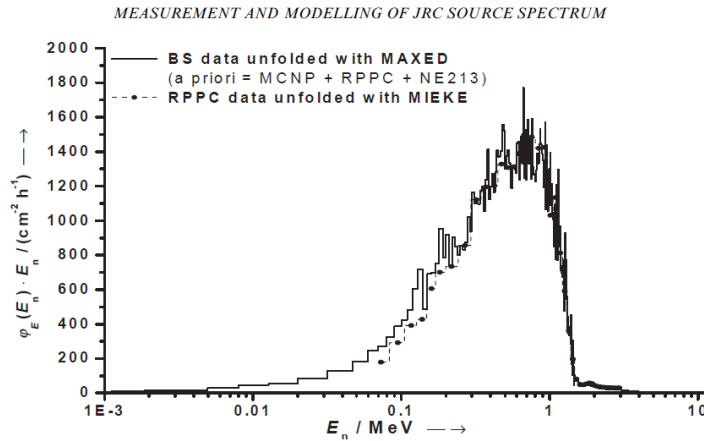


Figure 4-10 : Spectre en énergie d'une source AmLi [73]

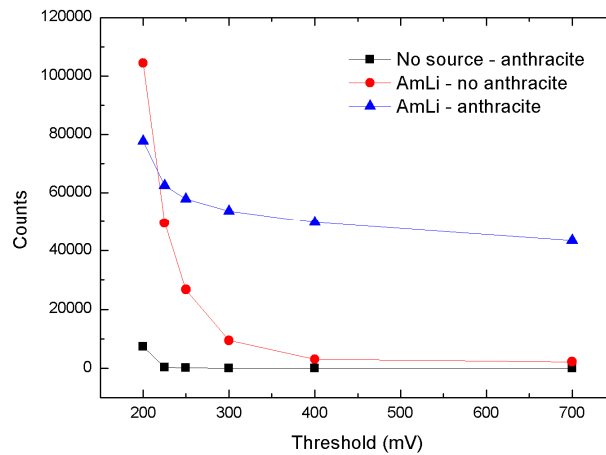
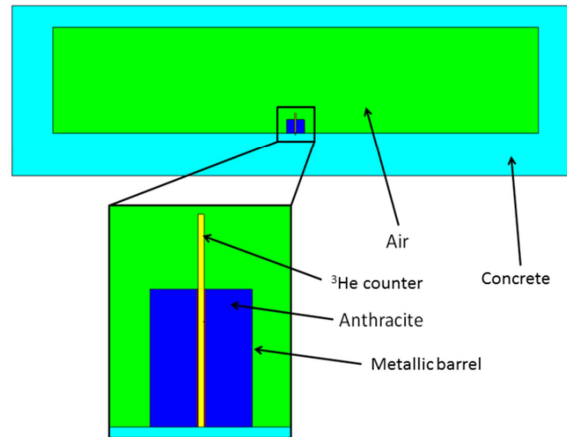


Figure 4-11 : Comptage neutron intégré sur 5 minutes en fonction du seuil de discrimination

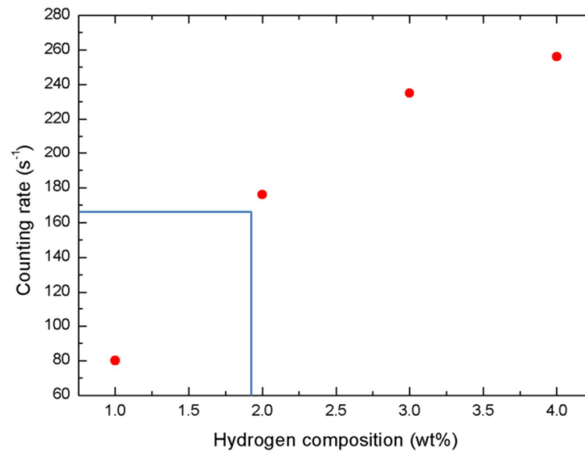
#### 4.2.4.2 Simulations et comparaison

Le dispositif est modélisé sous MCNPX 2.0.7 comme illustré en Figure 4-12. Une masse volumique moyenne de  $0,75 \text{ g.cm}^{-3}$  a été calculée pour le charbon anthracite. Ses principaux constituants sont le carbone (environ 95 wt%), l'oxygène (environ 2 wt%) et l'hydrogène (entre 1 et 4 wt%). La proportion de ce dernier influe notamment de manière conséquente sur le pouvoir modérateur du matériau. La Figure 4-13 montre les différents taux de comptage simulés pour différentes composition en hydrogène. Les résultats présentés prennent en compte la perte de comptage de 40% lié à l'utilisation d'un préamplificateur de courant [70]. Ces résultats sont à comparer avec le taux de comptage de 166 cps de l'expérience. Les taux de comptage obtenus via les simulations sont compatibles s'il est considéré une concentration d'hydrogène dans le charbon anthracite de 1,9 wt% ce qui représente une valeur crédible. Une analyse chimique plus fine du charbon anthracite et des essais avec un bloc de graphite permettrait de renforcer cette

étude. Néanmoins ces premiers résultats sont encourageants en vue de valider un tel poste de mesure.



**Figure 4-12 : Géométrie MCNPX du dispositif expérimental**



**Figure 4-13 : Taux de comptage simulés (MCNPX) pour différentes proportions d'hydrogène dans le charbon anthracite**

### 4.3 Etude de faisabilité théorique de la spectrométrie gamma hauts taux de comptage sur le sodium primaire

#### 4.3.1 Les produits de fission d'intérêt

Cette étude porte sur la faisabilité d'une spectrométrie gamma à hauts taux de comptage sur le sodium primaire afin d'assurer le suivi du relâchement des gaz de fission en cas de rupture de gaine. En effet, les différents retours d'expérience sur les ruptures de gaine en conditions RNR ou bien même REP ([30], [74]) indiquent que les gaz de fission xénon et krypton sont les premiers radioéléments à être relâchés dans le sodium primaire en quantités importantes dès les premiers instants de la rupture. Des relâchements de produits de fission volatiles comme le césium et l'iode sont aussi largement constatés avec des cinétiques plus lentes. Ce constat est

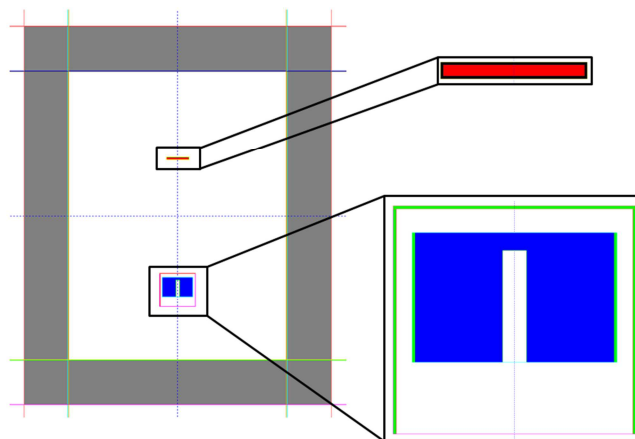
également confirmé par les différents suivis de ruptures de gaine réalisés au cours de cette thèse sur la boucle d'essais ISABELLE-1 du réacteur OSIRIS, où les spectres gamma relatifs aux premières secondes suivant la rupture de gaine sont composés presque uniquement de signatures gazeuses. Ces essais sur la boucle ISABELLE-1 seront détaillés plus amplement dans le chapitre 6.

## 4.3.2 Estimation des activités minimales détectables

### 4.3.2.1 Modélisation du poste de mesure

#### 4.3.2.1.1 Principe

Dans cette étude, la conception du poste de mesure pour la spectrométrie gamma sodium est inspirée du poste de mesure DND avec le prélèvement d'un échantillon de sodium au-dessus des assemblages. Ce prélèvement transite vers un poste de mesure déporté dans lequel se trouve une capacité de sodium contenant le prélèvement en regard d'un détecteur HPGe. Ces différents éléments sont intégrés dans une enceinte de plomb afin de limiter l'influence des rayonnements extérieurs. L'intérieur de cette dernière est tapissé d'une fine épaisseur de cuivre de 2 mm pour réduire l'impact de la fluorescence X du plomb. Le poste est modélisé sous MCNPX et illustré en Figure 4-14. Dans un premier temps, la capacité de sodium considérée est un mini-tube ( $\varnothing$  4-6 mm) d'une longueur de 50 mm situé au centre de l'enceinte. Le temps de transit  $t_r$  du sodium vers la capacité est une variable du problème.



**Figure 4-14 : Modèle MCNPX du poste de spectrométrie gamma du sodium composé d'une diode HPGe (cristal germanium en bleu, aluminium en vert) en face de la capacité de sodium (en rouge).**

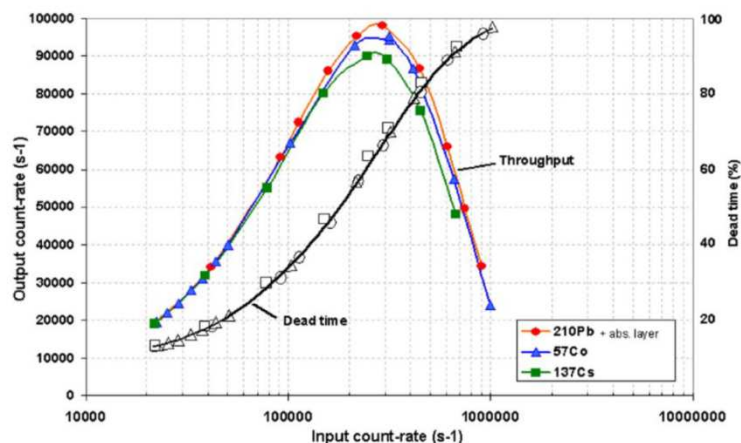
#### 4.3.2.1.2 Les diodes HPGe

Deux diodes HPGe de différentes dimensions sont ici considérées afin d'étudier l'impact du rendement de détection  $\varepsilon$  sur les activités minimales détectables. Les diodes modélisées sont le détecteur HPGe Canberra GR2021 (efficacité relative de 20%, FWHM (*Full Width at Half*

*Maximum*) de 2,1 keV à 1332 keV) utilisé durant cette thèse pour les essais sur la boucle d'irradiation ISABELLE-1 (voir chapitre VI) et le détecteur ORTEC GEM40P (efficacité relative de 40%, FWHM de 1,85 keV à 1332 keV).

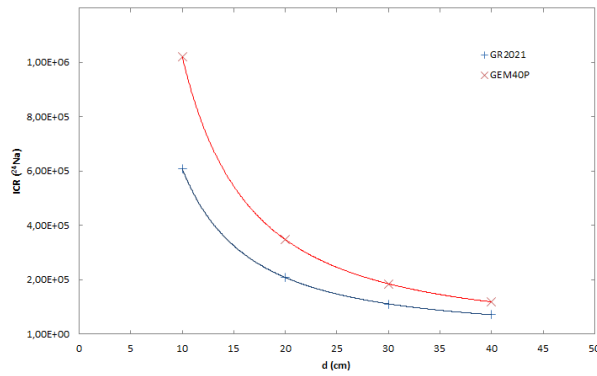
#### 4.3.2.1.3 La distance source-détecteur

La diode est placée à une distance  $d$  de la source. Cette distance est déterminée de manière à maximiser l'OCR (*Output Count Rate*) de la chaîne de spectrométrie gamma afin de minimiser les limites de détection et optimiser la précision des mesures isotopiques au sens de la statistique poissonnienne. Pour réaliser cette mesure, la chaîne de spectrométrie envisagée est la chaîne de mesure ADONIS en raison notamment de sa capacité à assurer la justesse de la mesure y compris à hauts taux de comptage et d'atteindre un taux de traitement supérieur aux chaînes de spectrométrie gamma conventionnelles. Le choix d'ADONIS est également justifié par sa robustesse métrologique lors de suivi d'activité fortement variable dans le temps. La technologie fera l'objet d'une discussion dans le chapitre V où son concept sera également présenté. Ainsi, la distance  $d$  est définie de manière à correspondre à un taux de comptage incident de l'ordre de  $2,8 \cdot 10^5$  cps, valeur maximisant l'OCR comme illustré sur la Figure 4-15 [75].



**Figure 4-15 : Variations du taux de comptage sortant et du temps mort d'ADONIS en fonction du taux de comptage incident [75]**

La Figure 4-16 présente le taux de comptage incident lié à l'activité gamma du sodium 24 en fonction de la distance source-détecteur. Les premières simulations montrent que cette activité contribue à hauteur d'environ 65% du taux de comptage incident total. La distance  $d$  est donc déterminée à partir des calculs liés au sodium 24 afin de viser un taux de comptage total incident de l'ordre de  $2,8 \cdot 10^5$  cps pour les deux diodes HPGe. Les distances  $d$  retenues pour les diodes Canberra GR2021 20% et Ortec GEM40P 40% sont respectivement de 22 cm et 31 cm correspondant à des taux de comptage incidents totaux de  $2,82 \cdot 10^5$  cps et  $2,75 \cdot 10^5$  cps.



**Figure 4-16 : Evolution du taux de comptage incident lié à l’activité gamma du sodium 24 en fonction de la distance source-détecteur (transit 10 secondes)**

#### 4.3.2.2 Définition des termes source gamma et bêta

Les termes sources des produits d’activation ( $^{24}\text{Na}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{23}\text{Ne}$ ,  $^{20}\text{F}$ ) sont déterminés à partir d’une quantification préliminaire de leur activité massique en cuve primaire pour le cœur d’ASTRID en fonctionnement normal [76]. La densité du sodium à 550°C retenue est de 0,820 permettant ainsi le calcul des activités volumiques résumées dans le Tableau 4-5. Les activités  $A_p$  au niveau du pot de mesure sont calculées en considérant les activités en cuve  $A_c$  et le transit d’une durée  $t_r$  jusqu’à la capacité de sodium comme un écoulement de type piston caractérisé par une vitesse constante pour tous les atomes. Un terme de décroissance est appliqué pour les différents temps de transit envisagés (équation (4.19)).

$$A_p = A_c e^{-\lambda t_r} \quad (4.19)$$

Produits d’activation	Activités volumiques (Bq.m <sup>-3</sup> )
$^{24}\text{Na}$ ( $t_{1/2} = 15$ h)	$2,5 \cdot 10^{14}$
$^{22}\text{Na}$ ( $t_{1/2} = 950$ j)	$3,0 \cdot 10^{10}$
$^{23}\text{Ne}$ ( $t_{1/2} = 37$ s)	$1,4 \cdot 10^{14}$
$^{20}\text{F}$ ( $t_{1/2} = 11$ s)	$2,1 \cdot 10^{14}$

**Tableau 4-5 : Activités volumiques des produits d’activation en cuve en fonctionnement normal**

Les émissions définissant le terme source gamma sont récapitulées dans le Tableau 4-6.

Produits d'activation	Energie (keV)	Intensité $\gamma$ (%)
$^{24}\text{Na}$ ( $t_{1/2} = 15$ h)	1369	100
	2754	100
$^{22}\text{Na}$ ( $t_{1/2} = 950$ j)	511	181
	1275	100
$^{23}\text{Ne}$ ( $t_{1/2} = 37$ s)	440	33
$^{20}\text{F}$ ( $t_{1/2} = 11$ s)	1634	100

**Tableau 4-6 : Principales émissions gamma des produits d'activation**

Le terme source bêta est défini à partir d'une densité de probabilité calculée suivant la forme du spectre continu d'émission bêta de chaque produit d'activation selon l'équation suivante [77]:

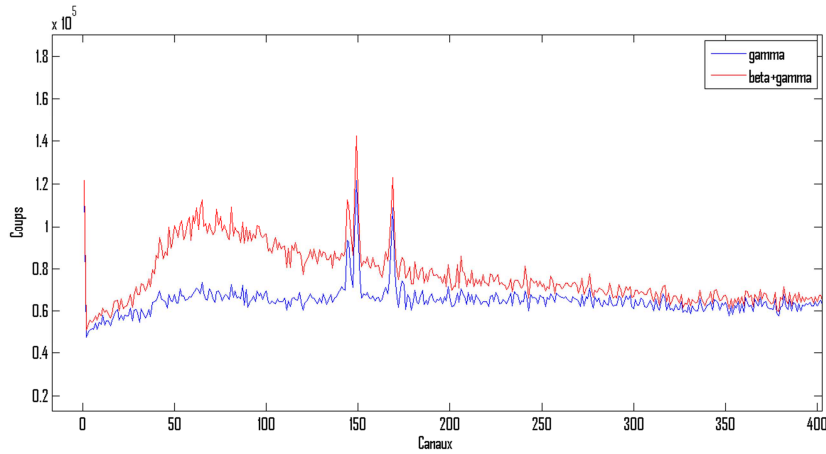
$$N(E) = \frac{C}{c^5} (E^2 + 2Em_e c^2)^{\frac{1}{2}} (E_{max} - E)^2 (E + m_e c^2) \quad (4.20)$$

Avec  $E$  l'énergie de l'électron (ou positron),  $E_{max}$  l'énergie maximale pouvant être emportée par l'électron (ou positron),  $m_e$  la masse de l'électron,  $c$  la célérité de la lumière et  $C$  une constante de normalisation. Le Tableau 4-7 récapitule les émissions bêta pour les différents produits d'activation.

Produits d'activation	Type d'émission	$E_{max}$ (keV)	Intensité $\beta$ (%)
$^{24}\text{Na}$ ( $t_{1/2} = 15$ h)	$\beta^-$	1390	100
$^{22}\text{Na}$ ( $t_{1/2} = 950$ j)	$\beta^+$	1567	100
$^{23}\text{Ne}$ ( $t_{1/2} = 37$ s)	$\beta^-$	2300	1
		3936	32
		4376	67
$^{20}\text{F}$ ( $t_{1/2} = 11$ s)	$\beta^-$	5395	100

**Tableau 4-7 : Emissions bêta des produits d'activation**

La Figure 4-17 illustre la nécessité de prendre en compte le terme bêta en raison d'une contribution non négligeable dans le spectre simulé des produits d'activation à basses énergies. L'élaboration de ce spectre, issu d'une simulation MCNPX de la réponse du détecteur au sodium 24, est détaillée dans la section suivante.



**Figure 4-17 : Influence du terme source bêta sur le spectre gamma simulé à basse énergie (cas du sodium 24)**

#### 4.3.2.3 Construction des spectres liés aux produits d'activation

Pour chaque produit d'activation et chaque type d'émission (béta et gamma), des simulations MNCPIX permettent de déterminer les spectres issus du dépôt d'énergie au sein du cristal germanium via un calcul de type tally F8. La résolution du détecteur est prise en compte via l'utilisation de la carte GEB (*Gaussian Energy Broadening*) qui applique un bruit sur les dépôts d'énergie afin de retranscrire sur le spectre résultant la largeur à mi-hauteur (FWHM) observée sur les pics gaussiens d'absorption totale dans les détecteurs réels. La FWHM est définie selon l'équation (4.21).

$$FWHM = a + b\sqrt{E + cE^2} \quad (4.21)$$

Avec  $E$  l'énergie du pic,  $a$ ,  $b$  et  $c$  des paramètres respectivement exprimés en MeV,  $\text{MeV}^{1/2}$  et  $\text{MeV}^{-1}$ . Ces paramètres sont déterminés à partir de la résolution du système d'équations impliquant les valeurs de FWHM connus pour le détecteur considéré.

Les spectres MCNPX en coups par seconde sont alors définis selon les équations (4.22) et (4.23).

$$S_i^\gamma = R_i^{F8\gamma} A_i I_i^\gamma \quad (4.22)$$

$$S_i^\beta = R_i^{F8\beta} A_i I_i^\beta \quad (4.23)$$

Avec  $R_i^{F8\gamma}$  et  $R_i^{F8\beta}$  respectivement les réponses du tally F8 pour chaque produit d'activation  $i$  et pour chaque type d'émission gamma et bêta,  $A_i$  l'activité de chaque produit d'activation dans la capacité de sodium,  $I_i^\gamma$  et  $I_i^\beta$  les intensités d'émission par désintégration. Le spectre MCNPX complet est alors construit en sommant les différentes contributions (équation (4.24)).

$$S = \sum_i (S_i^\gamma + S_i^\beta) \quad (4.24)$$



Le spectre en coups  $S'$  ainsi obtenu est multiplié par le temps d'acquisition de la mesure  $\Delta t$ . Ce temps d'acquisition est un autre paramètre de l'étude.

$$S' = S\Delta t \quad (4.25)$$

Un tirage poissonnien, avec pour paramètre le nombre de coups enregistrés dans chaque *bin* de l'histogramme, est ensuite réalisé afin de prendre en compte la nature aléatoire du comptage nucléaire (statistique poissonnienne).

$$S'' \sim \mathcal{P}(S') \quad (4.26)$$

Ce spectre peut être considéré comme une densité de probabilité de loi  $f_X$ . L'énergie enregistrée suite à chaque évènement est une variable aléatoire  $X$  dont les valeurs sont prises suivant la densité  $f_X$ . L'algorithme défini par les équations (4.27) à (4.31) permet de construire un nouveau spectre rendant compte des effets d'empilement des évènements.

$$X \sim f_X = \frac{S''}{\sum S''} \quad (4.27)$$

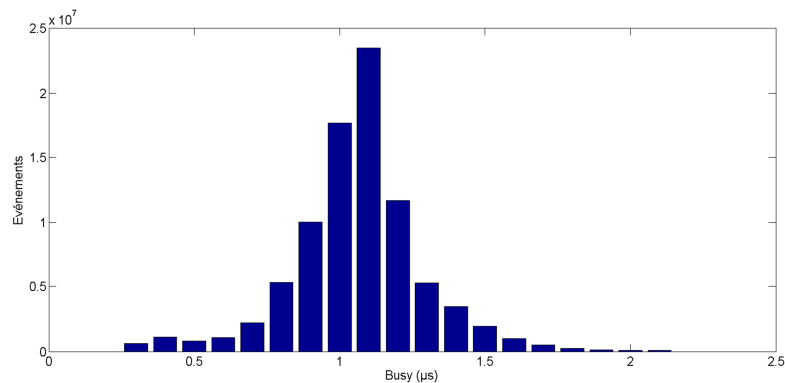
$$\forall i \in [1, \sum S''], \text{ si } \delta_i < P(\text{pileup}) \text{ alors } X'_j = X_{i-1} + X_i \quad (4.28)$$

$$\text{sinon } X'_j = X_i \text{ \& } j=j+1 \quad (4.29)$$

$$\text{avec } \delta_i \sim \mathcal{U}(0; 1) \quad (4.30)$$

$$\text{et } P(\text{pileup}) = 1 - e^{-2\tau ICR} \quad (4.31)$$

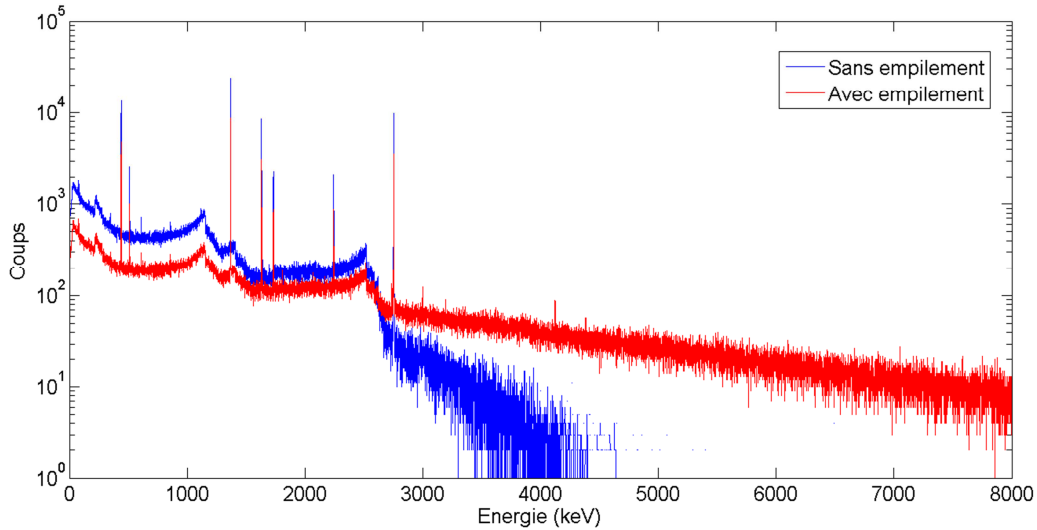
Avec  $ICR$  le taux de comptage incident au niveau du détecteur et  $\tau$  le temps d'occupation moyen pour le traitement d'une impulsion isolée. La Figure 4-18 illustre la distribution des temps d'occupation du système associés aux différents évènements enregistrés. Le temps d'occupation moyen  $\tau$  retenu par la suite est évalué à 1,1  $\mu\text{s}$ .



**Figure 4-18 : Distribution des temps d'occupation du système**

La Figure 4-19 illustre le spectre simulé lié aux produits d'activation pour un temps de transit de la cuve au pot de mesure et un temps de d'acquisition de 10 secondes chacun. L'impact de l'empilement est mis en évidence avec un dépeuplement des basses énergies, les évènements

empilés peuplant alors la région des hautes énergies. L'apparition de pics somme est également constatée. Ces pics sont présentés dans le Tableau 4-8 pour un temps de transit et un temps d'acquisition de 10 secondes. Aucun de ceux-ci n'implique le sodium 22 en raison de sa faible activité en regard des autres produits d'activation. Le peuplement des hautes énergies au détriment des basses énergies ainsi que l'apparition de pics somme aux énergies attendues sont en accord avec les observations relevant d'un spectre empilé.



**Figure 4-19 : Spectres simulés des produits d'activation avec et sans empilement pour des temps de transit et d'acquisition de 10 secondes**

Pics somme	Origine
2737 keV	1369 keV ( $^{24}\text{Na}$ ) + 1369 keV ( $^{24}\text{Na}$ )
4122 keV	1369 keV ( $^{24}\text{Na}$ ) + 2754 keV ( $^{24}\text{Na}$ )
5508 keV	2754 keV ( $^{24}\text{Na}$ ) + 2754 keV ( $^{24}\text{Na}$ )
1809 keV	1369 keV ( $^{24}\text{Na}$ ) + 440 keV ( $^{23}\text{Ne}$ )
3194 keV	2754 keV ( $^{24}\text{Na}$ ) + 440 keV ( $^{23}\text{Ne}$ )
3003 keV	1369 keV ( $^{24}\text{Na}$ ) + 1634 keV ( $^{20}\text{F}$ )
4388 keV	2754 keV ( $^{24}\text{Na}$ ) + 1634 keV ( $^{20}\text{F}$ )
2074 keV	440 keV ( $^{23}\text{Ne}$ ) + 1634 keV ( $^{20}\text{F}$ )

**Tableau 4-8 : Pics somme observés dans le spectre simulé des produits d'activation pour des temps de transit et d'acquisition de 10 secondes**

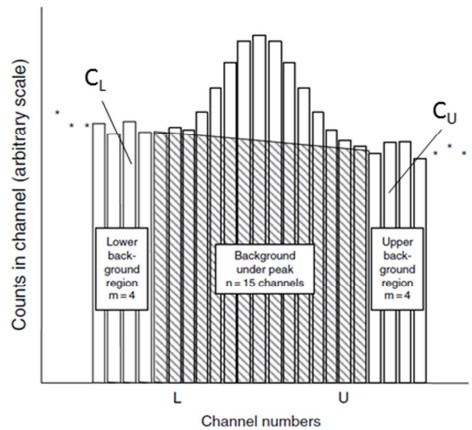
#### 4.3.2.4 Calcul des activités minimales détectables (AMD)

Les AMD des différents produits de fission sont calculées à partir de l'estimation des limites de détection. La limite de détection d'indice de confiance 95% est définie selon les équations (4.32) et (4.33) telles que présentées par G. Gilmore [78].

$$B = n \frac{C_L + C_U}{2m} \quad (4.32)$$

$$LD_{95\%} = 2,71 + 3,29 \sqrt{B \frac{1+n}{2m}} \quad (4.33)$$

Avec  $B$  le fond en coups correspondant à la région d'intérêt d'un éventuel pic lié à l'activité d'un produit de fission.  $n$  est le nombre de canaux définissant ce fond et  $m$  le nombre de canaux de part et d'autre de la région définissant le pic.  $C_L$  et  $C_U$  sont respectivement le nombre de coups dans les régions situées en amont et en aval du pic comme illustré sur la Figure 4-20.



**Figure 4-20 : Illustration pour le calcul du fond  $B$  (extrait de [78]).**

Pour chaque produit de fission, la région d'intérêt de  $n$  canaux sur laquelle est défini le pic étudié est déterminée à partir de la FWHM calculée dans l'équation (4.21). La région d'intérêt dans cette étude est fixée à 3 FWHM.  $m$  est pris égal à 4.

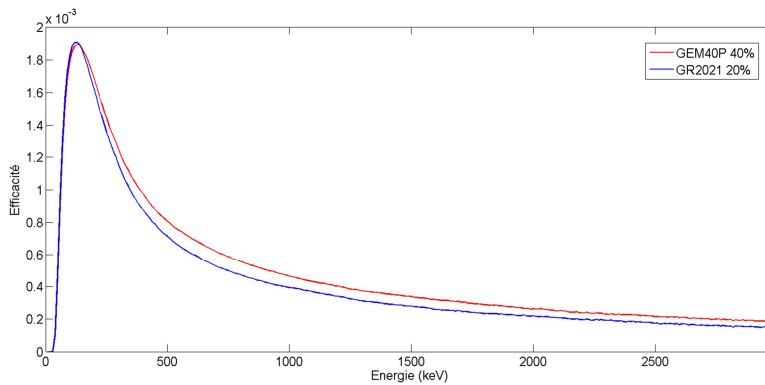
L'AMD exprimée en Bq au niveau de la capacité de sodium est déterminée pour un pic d'absorption totale d'un produit de fission  $\gamma$  selon l'équation (4.34).

$$AMD_{pot} = \frac{LD}{\varepsilon_{\gamma} I_{\gamma} t_{acq} (1 - P(pile\ up))} \quad (4.34)$$

Avec  $LD$  la limite de détection en coups,  $\varepsilon_{\gamma}$  le rendement de détection du poste de mesure,  $I_{\gamma}$  l'intensité d'émission gamma,  $t_{acq}$  le temps d'acquisition de la mesure en seconde et  $P(pile\ up)$  la probabilité d'empilement présentée dans l'équation (4.31).

Les rendements de détection  $\varepsilon$  correspondant au poste de mesure implémentant respectivement la diode Canberra GR2021 et la diode Ortec GEM40P sont obtenus dans chaque cas par une

série de 300 simulations MCNPX sur une plage d'énergie allant de 0 à 3 MeV par pas de 10 keV. Ces derniers sont présentés en Figure 4-21. Sans surprise, la diode GEM40P apparaît plus efficace vers les hautes énergies en raison de son volume actif plus important.



**Figure 4-21 : Rendements de détection simulés du poste de mesure pour les deux détecteurs HPGe considérés dans cette étude**

L'activité volumique minimale détectable en cuve est obtenue en considérant la décroissance radioactive lors du transit entre la cuve et le pot de mesure comme indiqué dans l'équation (4.35).

$$AMD_{cuve} = \frac{AMD_{pot}}{V_{pot} e^{-\lambda t_r}} \quad (4.35)$$

Avec  $MDA_{cuve}$  l'activité minimale détectable en cuve exprimée en  $Bq.m^{-3}$ ,  $MDA_{pot}$  l'activité dans le pot de mesure en Bq,  $V_{pot}$  le volume du pot de sodium en  $m^{-3}$ ,  $\lambda$  la constante de décroissance du produit de fission et  $t_r$  le temps de transit entre la cuve et le pot de mesure en secondes.

Les Tableau 4-9 à Tableau 4-12 résument les activités minimales détectables pour les produits de fission gazeux et volatiles calculées au point de prélèvement du sodium pour les deux configurations implémentant d'une part la diode GR2021 et d'autre part la diode GEM40P. Différents temps de transit du sodium du point de prélèvement au poste de mesure, ainsi que différents temps d'acquisition, sont considérés. Les activités élevées des différents produits d'activation, et tout particulièrement la contribution du sodium 24 de période longue ( $T_{1/2} = 15$  h), engendrent des AMD importantes, au minimum de l'ordre de plusieurs centaines de GBq/m<sup>3</sup>. L'évolution des AMD est orientée par le temps de transit jusqu'au poste de mesure avec deux effets antagonistes :

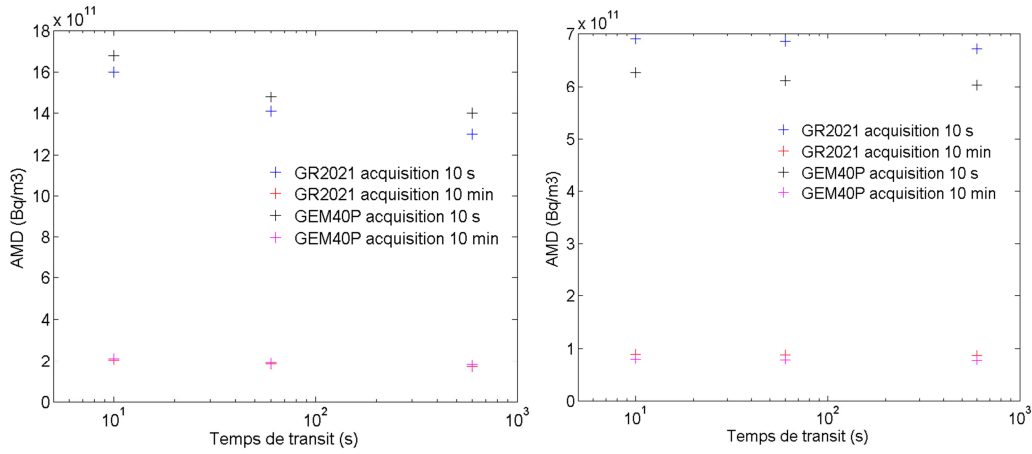
- Les contributions au spectre des produits d'activation dont les périodes sont courtes au vu du temps de transit (<sup>20</sup>F et <sup>23</sup>Ne) chutent rapidement permettant d'atteindre des AMD plus faibles.

- La réponse du détecteur aux produits de fission de périodes courtes diminue également avec l'augmentation du temps de transit, augmentant ainsi rapidement les AMD pour les produits de fission concernés comme le xénon 139 ( $T_{1/2} = 40$  s) et le krypton 90 ( $T_{1/2} = 32$  s).

En raison de ces deux effets, différentes évolutions des AMD en fonction du temps de transit sont observées :

- Les AMD croissantes avec le temps de transit : c'est par exemple le cas du xénon 139, les contributions au spectre des produits de fission de faible demi-vie diminuent rapidement avec le temps de transit, en comparaison à la contribution globale des produits d'activations.
- Les AMD décroissantes avec le temps de transit : c'est le cas du xénon 133, la contribution des produits d'activation ( $^{20}\text{F}$  et  $^{23}\text{Ne}$ ) chute plus rapidement que celle des produits de fission de demi-vie plus grande.
- Les AMD décroissantes puis croissantes : cette évolution est notamment observée sur l'AMD calculée à partir du pic à 1436 keV du césium 138, la chute rapide de la contribution liée au fluor 20 entraîne dans un premier temps une diminution de l'AMD avant de repartir à la hausse en raison d'une décroissance plus rapide du césium comparé au sodium 24.

Comme attendu, les AMD diminuent en augmentant le temps d'acquisition. Néanmoins, ce temps d'acquisition, tout comme le temps de transit, doit rester faible au vu de l'objectif d'établir un diagnostic rapide des relâchements dans le sodium dès les premiers instants de la rupture de gaine. La Figure 4-22 illustre ces AMD pour les cas du xénon 133 et du xénon 135. Dans le cas du xénon 133, les AMD dans la configuration implémentant la diode GR2021 apparaissent plus faibles qu'avec la diode GEM40P en raison d'une efficacité de détection légèrement supérieure à 81 keV dans cette configuration. A l'inverse, les AMD du xénon 135 apparaissent plus faibles dans la configuration implémentant la diode GEM40P en raison du meilleur rendement de détection de cette dernière à 250 keV. Il apparaît donc qu'à taux de comptage incident semblables, une diode plus efficace permet d'atteindre des AMD plus faibles lorsque celles-ci sont calculées à partir de ROI (*Region Of Interest*) dans la région des hautes énergies du spectre.



**Figure 4-22 : AMD du xénon 133 (à gauche) et du xénon 135 (à droite) selon le détecteur utilisé pour différents temps de transit et temps d'acquisition**

Radioélément	Période	Energie (keV)	Intensité (%)	t <sub>r</sub> =10 s	t <sub>r</sub> =1 min	t <sub>r</sub> =10 min
<sup>133</sup> Xe	5,25 j	81	37	1,60E+12	1,41E+12	1,30E+12
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	90	6,90E+11	6,85E+11	6,71E+11
<sup>135m</sup> Xe	15,3 min	526,6	80,8	1,04E+12	1,08E+12	1,62E+12
<sup>137</sup> Xe	3,8 min	455,5	31,2	2,38E+12	2,73E+12	1,39E+13
<sup>138</sup> Xe	14,1 min	258,4	31,5	1,99E+12	2,04E+12	3,04E+12
		434,6	20,3	1,01E+13	8,23E+12	5,65E+12
		1768,3	16,7	1,41E+13	1,45E+13	2,32E+13
		2015,8	12,3	2,30E+13	2,48E+13	3,97E+13
		396,5	6,3	1,08E+13	1,13E+13	1,72E+13
<sup>139</sup> Xe	40 s	218,6	56	1,08E+12	2,46E+12	3,00E+16
		296,5	21,7	3,08E+12	7,29E+12	9,02E+16
		175	19,9	2,86E+12	6,34E+12	7,17E+16
		289,8	9,2	7,61E+12	1,83E+13	2,24E+17
		393,5	6,7	1,19E+13	2,79E+13	3,52E+17
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,6	49,6	1,37E+12	1,39E+12	1,43E+12
		2554,8	9,2	4,09E+13	4,45E+13	4,89E+13
		845,4	7,4	1,90E+13	1,93E+13	2,13E+13
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	34,6	1,04E+13	1,11E+13	1,20E+13
		196,3	26	1,68E+12	1,63E+12	1,58E+12
		195,8	13,2	3,34E+12	3,25E+12	3,11E+12
		834,8	13	1,09E+13	1,10E+13	1,14E+13
		1529,8	10,9	1,85E+13	1,79E+13	1,86E+13
<sup>89</sup> Kr	3,2 min	220,9	20,1	2,80E+12	3,25E+12	2,31E+13
		586	16,7	5,91E+12	6,96E+12	4,99E+13
		904,3	7,2	2,30E+13	2,82E+13	2,07E+14
		1472,8	6,9	3,34E+13	3,34E+13	2,49E+14

Chapitre 4 - Etudes théoriques par simulations Monte-Carlo

<sup>89</sup> Kr	3,2 min	497,4	6,6	1,26E+13	1,51E+13	1,05E+14
<sup>90</sup> Kr	32 s	1118,7	39	7,41E+12	2,35E+13	2,58E+18
		121,8	35	1,47E+12	3,92E+12	3,92E+17
		539,5	30,8	3,58E+12	1,03E+13	1,11E+18
		242,2	9,9	7,47E+12	2,17E+13	2,26E+18
		1537,9	9,7	2,55E+13	7,11E+13	7,66E+18
<sup>134</sup> Cs	2 ans	604,7	97,6	9,78E+11	9,77E+11	9,80E+11
		795,9	85,5	1,56E+12	1,53E+12	1,61E+12
		569,3	15,4	5,85E+12	5,62E+12	5,60E+12
		802	8,7	1,55E+13	1,54E+13	1,59E+13
		563,2	8,3	1,03E+13	1,05E+13	1,02E+13
<sup>136</sup> Cs	13,2 j	818,5	99,7	1,36E+12	1,38E+12	1,37E+12
		1048,1	80	2,51E+12	2,63E+12	2,72E+12
		340,5	42,2	1,62E+12	1,62E+12	1,62E+12
		1235,4	20	1,06E+13	9,78E+12	9,90E+12
		273,6	11,1	5,47E+12	5,35E+12	5,16E+12
<sup>137</sup> Cs	30 ans	661,6	85	1,23E+12	1,20E+12	1,24E+12
<sup>138</sup> Cs	33,4 min	1435,9	76,3	2,82E+12	2,57E+12	3,01E+12
		462,8	30,7	2,50E+12	2,53E+12	3,03E+12
		1009,8	29,8	6,17E+12	6,37E+12	7,93E+12
		2218	15,2	2,02E+13	2,23E+13	2,78E+13
		547	10,8	8,38E+12	8,22E+12	9,94E+12
<sup>131</sup> I	8 j	364,5	81,2	7,97E+11	7,92E+11	8,01E+11
		637	7,1	1,40E+13	1,38E+13	1,43E+13
		284,3	6,14	1,01E+13	9,95E+12	9,70E+12
		722,9	1,8	6,66E+13	6,53E+13	6,53E+13
<sup>132</sup> I	2,3 h	667,7	98,7	1,11E+12	1,10E+12	1,15E+12
		772,6	75,6	1,74E+12	1,71E+12	1,84E+12
		954,6	17,6	9,82E+12	1,00E+13	1,08E+13
		522,7	16	5,20E+12	5,08E+12	5,38E+12
		630,2	13,3	8,13E+12	7,81E+12	7,99E+12
<sup>133</sup> I	20,9 h	529,9	86,3	9,81E+11	9,66E+11	9,48E+11
		875,3	4,5	3,30E+13	3,35E+13	3,42E+13
		1298,2	2,3	8,52E+13	7,24E+13	7,10E+13
		706,6	1,5	7,74E+13	7,69E+13	7,71E+13
		1236,4	1,5	1,41E+14	1,27E+14	1,27E+14
<sup>134</sup> I	52,5 min	847	95,4	1,49E+12	1,52E+12	1,71E+12
		884,1	64,9	2,28E+12	2,37E+12	2,72E+12
		1072,6	15	1,43E+13	1,54E+13	1,76E+13
		595,4	11,2	8,47E+12	8,57E+12	9,50E+12
		621,8	10,6	9,24E+12	9,21E+12	1,06E+13
<sup>135</sup> I	6,6 h	1260,4	28,7	6,81E+12	6,18E+12	5,96E+12
		1131,5	22,6	1,09E+13	1,17E+13	1,21E+13

<sup>135</sup> I	6,6 h	1678	906	2,28E+13	2,28E+13	2,33E+13
		1457,6	8,7	2,48E+13	2,14E+13	2,23E+13
		1038,8	7,9	2,42E+13	2,52E+13	2,63E+13

**Tableau 4-9 : AMD en Bq.m<sup>-3</sup> pour un temps d'acquisition de 10 secondes avec la diode GR2021**

Radioélément	Période	Energie (keV)	Intensité (%)	t <sub>r</sub> =10 s	t <sub>r</sub> =1 min	t <sub>r</sub> =10 min
<sup>133</sup> Xe	5,25 j	81	37	2,05E+11	1,82E+11	1,70E+11
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	90	8,99E+10	8,84E+10	8,73E+10
<sup>135m</sup> Xe	15,3 min	526,6	80,8	1,34E+11	1,37E+11	2,06E+11
<sup>137</sup> Xe	3,8 min	455,5	31,2	3,03E+11	3,48E+11	1,78E+12
<sup>138</sup> Xe	14,1 min	258,4	31,5	2,56E+11	2,61E+11	3,95E+11
		434,6	20,3	1,30E+12	1,06E+12	7,15E+11
		1768,3	16,7	1,78E+12	1,87E+12	2,95E+12
		2015,8	12,3	2,87E+12	3,17E+12	5,03E+12
		396,5	6,3	1,39E+12	1,43E+12	2,21E+12
<sup>139</sup> Xe	40 s	218,6	56	1,40E+11	3,21E+11	3,88E+15
		296,5	21,7	3,94E+11	9,29E+11	1,14E+16
		175	19,9	3,68E+11	8,12E+11	9,31E+15
		289,8	9,2	9,85E+11	2,34E+12	2,88E+16
		393,5	6,7	1,54E+12	3,62E+12	4,49E+16
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,6	49,6	1,77E+11	1,75E+11	1,87E+11
		2554,8	9,2	5,16E+12	5,65E+12	6,31E+12
		845,4	7,4	2,44E+12	2,48E+12	2,71E+12
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	34,6	1,32E+12	1,46E+12	1,56E+12
		196,3	26	2,19E+11	2,06E+11	2,03E+11
		195,8	13,2	4,33E+11	4,08E+11	4,00E+11
		834,8	13	1,39E+12	1,41E+12	1,48E+12
		1529,8	10,9	2,42E+12	2,30E+12	2,36E+12
<sup>89</sup> Kr	3,2 min	220,9	20,1	3,63E+11	4,22E+11	2,93E+12
		586	16,7	7,62E+11	9,02E+11	6,45E+12
		904,3	7,2	2,96E+12	3,61E+12	2,62E+13
		1472,8	6,9	4,18E+12	4,42E+12	3,12E+13
		497,4	6,6	1,64E+12	1,93E+12	1,38E+13
<sup>90</sup> Kr	32 s	1118,7	39	9,63E+11	3,02E+12	3,31E+17
		121,8	35	1,90E+11	5,00E+11	5,01E+16
		539,5	30,8	4,60E+11	1,32E+12	1,41E+17
		242,2	9,9	9,65E+11	2,78E+12	2,91E+17
		1537,9	9,7	3,26E+12	9,20E+12	9,75E+17
<sup>134</sup> Cs	2 ans	604,7	97,6	1,28E+11	1,26E+11	1,25E+11
		795,9	85,5	2,00E+11	2,00E+11	2,02E+11



<sup>134</sup> Cs	2 ans	569,3	15,4	7,44E+11	7,33E+11	7,31E+11
		802	8,7	1,99E+12	1,99E+12	2,02E+12
		563,2	8,3	1,37E+12	1,34E+12	1,34E+12
<sup>136</sup> Cs	13,2 j	818,5	99,7	1,75E+11	1,76E+11	1,78E+11
		1048,1	80	3,25E+11	3,39E+11	3,46E+11
		340,5	42,2	2,07E+11	2,08E+11	2,07E+11
		1235,4	20	1,35E+12	1,27E+12	1,27E+12
		273,6	11,1	7,01E+11	6,82E+11	6,60E+11
<sup>137</sup> Cs	30 ans	661,6	85	1,58E+11	1,58E+11	1,59E+11
<sup>138</sup> Cs	33,4 min	1435,9	76,3	3,73E+11	3,28E+11	3,86E+11
		462,8	30,7	3,24E+11	3,23E+11	3,88E+11
		1009,8	29,8	7,89E+11	8,28E+11	1,02E+12
		2218	15,2	2,63E+12	2,87E+12	3,56E+12
		547	10,8	1,07E+12	1,06E+12	1,28E+12
<sup>131</sup> I	8 j	364,5	81,2	1,04E+11	1,02E+11	1,01E+11
		637	7,1	1,81E+12	1,80E+12	1,81E+12
		284,3	6,14	1,28E+12	1,27E+12	1,25E+12
		722,9	1,8	8,45E+12	8,40E+12	8,46E+12
<sup>132</sup> I	2,3 h	667,7	98,7	1,41E+11	1,41E+11	1,47E+11
		772,6	75,6	2,20E+11	2,22E+11	2,33E+11
		954,6	17,6	1,25E+12	1,28E+12	1,36E+12
		522,7	16	6,69E+11	6,59E+11	6,86E+11
		630,2	13,3	1,01E+12	1,00E+12	1,06E+12
<sup>133</sup> I	20,9 h	529,9	86,3	1,25E+11	1,23E+11	1,23E+11
		875,3	4,5	4,24E+12	4,29E+12	4,36E+12
		1298,2	2,3	1,11E+13	9,23E+12	9,04E+12
		706,6	1,5	9,90E+12	9,88E+12	9,96E+12
		1236,4	1,5	1,79E+13	1,66E+13	1,67E+13
<sup>134</sup> I	52,5 min	847	95,4	1,91E+11	1,96E+11	2,23E+11
		884,1	64,9	2,94E+11	3,01E+11	3,43E+11
		1072,6	15	1,84E+12	1,94E+12	2,23E+12
		595,4	11,2	1,10E+12	1,10E+12	1,23E+12
		621,8	10,6	1,21E+12	1,20E+12	1,36E+12
<sup>135</sup> I	6,6 h	1260,4	28,7	8,96E+11	7,88E+11	7,91E+11
		1131,5	22,6	1,39E+12	1,49E+12	1,55E+12
<sup>135</sup> I	6,6 h	1678	906	2,97E+12	2,91E+12	2,97E+12
		1457,6	8,7	3,19E+12	2,79E+12	2,79E+12
		1038,8	7,9	3,14E+12	3,30E+12	3,40E+12

**Tableau 4-10 : AMD en Bq.m<sup>-3</sup> pour un temps d'acquisition de 10 minutes avec la diode GR2021**

Radioélément	Période	Energie (keV)	Intensité (%)	$t_r=10$ s	$t_r=1$ min	$t_r=10$ min
$^{133}\text{Xe}$	5,25 j	81	37	1,68E+12	1,48E+12	1,40E+12
$^{135}\text{Xe}$	9,14 h	249,8	90	6,27E+11	6,11E+11	6,03E+11
$^{135m}\text{Xe}$	15,3 min	526,6	80,8	9,34E+11	9,27E+11	1,40E+12
$^{137}\text{Xe}$	3,8 min	455,5	31,2	2,11E+12	2,48E+12	1,26E+13
$^{138}\text{Xe}$	14,1 min	258,4	31,5	1,78E+12	1,78E+12	2,72E+12
		434,6	20,3	9,69E+12	7,83E+12	5,13E+12
		1768,3	16,7	1,11E+13	1,14E+13	1,86E+13
		2015,8	12,3	1,79E+13	1,93E+13	3,12E+13
		396,5	6,3	9,88E+12	1,01E+13	1,56E+13
$^{139}\text{Xe}$	40 s	218,6	56	1,03E+12	2,37E+12	2,85E+16
		296,5	21,7	3,23E+12	7,55E+12	9,35E+16
		175	19,9	2,78E+12	6,21E+12	7,11E+16
		289,8	9,2	7,93E+12	1,90E+13	2,40E+17
		393,5	6,7	1,10E+13	2,57E+13	3,23E+17
$^{87}\text{Kr}$	1,3 h	402,6	49,6	1,27E+12	1,26E+12	1,32E+12
		2554,8	9,2	3,30E+13	3,66E+13	4,08E+13
		845,4	7,4	1,54E+13	1,58E+13	1,74E+13
$^{88}\text{Kr}$	2,8 h	2392,1	34,6	8,20E+12	9,09E+12	9,74E+12
		196,3	26	1,71E+12	1,62E+12	1,53E+12
		195,8	13,2	3,35E+12	3,17E+12	3,00E+12
		834,8	13	8,93E+12	8,84E+12	9,10E+12
		1529,8	10,9	1,47E+13	1,51E+13	1,52E+13
$^{89}\text{Kr}$	3,2 min	220,9	20,1	2,66E+12	3,12E+12	2,17E+13
		586	16,7	4,99E+12	5,96E+12	4,30E+13
		904,3	7,2	1,86E+13	2,23E+13	1,62E+14
		1472,8	6,9	2,62E+13	2,83E+13	1,93E+14
		497,4	6,6	1,13E+13	1,32E+13	9,55E+13
$^{90}\text{Kr}$	32 s	1118,7	39	6,27E+12	1,93E+13	2,13E+18
		121,8	35	1,50E+12	3,95E+12	4,00E+17
		539,5	30,8	3,07E+12	8,77E+12	9,45E+17
		242,2	9,9	6,84E+12	1,97E+13	2,03E+18
		1537,9	9,7	2,11E+13	5,74E+13	6,33E+18
$^{134}\text{Cs}$	2 ans	604,7	97,6	8,45E+11	8,25E+11	8,37E+11
		795,9	85,5	1,31E+12	1,29E+12	1,30E+12
		569,3	15,4	4,88E+12	4,84E+12	4,69E+12
		802	8,7	1,28E+13	1,25E+13	1,29E+13
		563,2	8,3	9,41E+12	8,96E+12	8,69E+12
$^{136}\text{Cs}$	13,2 j	818,5	99,7	1,11E+12	1,15E+12	1,12E+12
		1048,1	80	2,07E+12	2,15E+12	2,16E+12

<sup>136</sup> Cs	13,2 j	340,5	42,2	1,52E+12	1,53E+12	1,52E+12
		1235,4	20	8,50E+12	8,16E+12	8,08E+12
		273,6	11,1	5,33E+12	5,20E+12	5,06E+12
<sup>137</sup> Cs	30 ans	661,6	85	1,04E+12	1,03E+12	1,03E+12
<sup>138</sup> Cs	33,4 min	1435,9	76,3	2,36E+12	2,18E+12	2,42E+12
		462,8	30,7	2,26E+12	2,27E+12	2,65E+12
		1009,8	29,8	5,00E+12	5,16E+12	6,20E+12
		2218	15,2	1,62E+13	1,80E+13	2,22E+13
		547	10,8	7,19E+12	7,14E+12	8,61E+12
<sup>131</sup> I	8 j	364,5	81,2	7,52E+11	7,19E+11	7,23E+11
		637	7,1	1,19E+13	1,17E+13	1,15E+13
		284,3	6,14	1,01E+13	1,01E+13	9,92E+12
		722,9	1,8	5,38E+13	5,28E+13	5,23E+13
<sup>132</sup> I	2,3 h	667,7	98,7	9,29E+11	9,09E+11	9,40E+11
		772,6	75,6	1,43E+12	1,43E+12	1,49E+12
		954,6	17,6	7,59E+12	7,81E+12	8,46E+12
		522,7	16	4,57E+12	4,48E+12	4,54E+12
		630,2	13,3	6,52E+12	6,69E+12	6,76E+12
<sup>133</sup> I	20,9 h	529,9	86,3	8,64E+11	8,43E+11	7,96E+11
		875,3	4,5	2,70E+13	2,76E+13	2,80E+13
		1298,2	2,3	6,92E+13	5,83E+13	5,76E+13
		706,6	1,5	6,35E+13	6,09E+13	6,33E+13
		1236,4	1,5	1,14E+14	1,07E+14	1,09E+14
<sup>134</sup> I	52,5 min	847	95,4	1,19E+12	1,26E+12	1,39E+12
		884,1	64,9	1,89E+12	1,91E+12	2,13E+12
		1072,6	15	1,17E+13	1,24E+13	1,43E+13
		595,4	11,2	7,33E+12	7,15E+12	8,10E+12
		621,8	10,6	8,01E+12	7,82E+12	8,90E+12
<sup>135</sup> I	6,6 h	1260,4	28,7	5,67E+12	5,06E+12	5,11E+12
		1131,5	22,6	9,07E+12	9,67E+12	1,00E+13
<sup>135</sup> I	6,6 h	1678	906	1,81E+13	1,81E+13	1,85E+13
		1457,6	8,7	2,02E+13	1,82E+13	1,77E+13
		1038,8	7,9	1,98E+13	2,13E+13	2,16E+13

**Tableau 4-11 : AMD en Bq.m<sup>-3</sup> pour un temps d'acquisition de 10 secondes avec la diode GEM40P**

Radioélément	Période	Energie (keV)	Intensité (%)	t <sub>r</sub> =10 s	t <sub>r</sub> =1 min	t <sub>r</sub> =10 min
<sup>133</sup> Xe	5,25 j	81	37	2,13E+11	1,90E+11	1,79E+11
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	90	8,10E+10	7,91E+10	7,80E+10
<sup>135m</sup> Xe	15,3 min	526,6	80,8	1,18E+11	1,20E+11	1,80E+11
<sup>137</sup> Xe	3,8 min	455,5	31,2	2,77E+11	3,19E+11	1,63E+12

<sup>138</sup> Xe	14,1 min	258,4	31,5	2,28E+11	2,32E+11	3,50E+11
		434,6	20,3	1,24E+12	1,01E+12	6,49E+11
		1768,3	16,7	1,43E+12	1,50E+12	2,36E+12
		2015,8	12,3	2,29E+12	2,50E+12	3,97E+12
		396,5	6,3	1,27E+12	1,29E+12	2,00E+12
<sup>139</sup> Xe	40 s	218,6	56	1,34E+11	3,05E+11	3,69E+15
		296,5	21,7	4,12E+11	9,74E+11	1,20E+16
		175	19,9	3,54E+11	7,89E+11	9,21E+15
		289,8	9,2	1,02E+12	2,45E+12	3,06E+16
		393,5	6,7	1,42E+12	3,30E+12	4,09E+16
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,6	49,6	1,62E+11	1,59E+11	1,72E+11
		2554,8	9,2	4,18E+12	4,61E+12	5,16E+12
		845,4	7,4	2,01E+12	2,04E+12	2,22E+12
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	34,6	1,07E+12	1,18E+12	1,27E+12
		196,3	26	2,19E+11	2,05E+11	1,98E+11
		195,8	13,2	4,30E+11	4,02E+11	3,88E+11
		834,8	13	1,13E+12	1,13E+12	1,19E+12
		1529,8	10,9	1,99E+12	1,91E+12	1,97E+12
<sup>89</sup> Kr	3,2 min	220,9	20,1	3,42E+11	3,98E+11	2,77E+12
		586	16,7	6,48E+11	7,65E+11	5,45E+12
		904,3	7,2	2,37E+12	2,87E+12	2,07E+13
		1472,8	6,9	3,40E+12	3,61E+12	2,54E+13
		497,4	6,6	1,45E+12	1,71E+12	1,21E+13
<sup>90</sup> Kr	32 s	1118,7	39	7,97E+11	2,49E+12	2,75E+17
		121,8	35	1,93E+11	5,09E+11	5,14E+16
		539,5	30,8	3,99E+11	1,14E+12	1,22E+17
		242,2	9,9	8,85E+11	2,53E+12	2,64E+17
		1537,9	9,7	2,66E+12	7,52E+12	7,99E+17
<sup>134</sup> Cs	2 ans	604,7	97,6	1,10E+11	1,08E+11	1,07E+11
		795,9	85,5	1,65E+11	1,65E+11	1,66E+11
		569,3	15,4	6,31E+11	6,16E+11	6,14E+11
		802	8,7	1,65E+12	1,64E+12	1,66E+12
		563,2	8,3	1,17E+12	1,15E+12	1,14E+12
<sup>136</sup> Cs	13,2 j	818,5	99,7	1,44E+11	1,44E+11	1,45E+11
		1048,1	80	2,64E+11	2,74E+11	2,79E+11
<sup>136</sup> Cs	13,2 j	340,5	42,2	1,94E+11	1,97E+11	1,97E+11
		1235,4	20	1,09E+12	1,04E+12	1,04E+12
		273,6	11,1	6,82E+11	6,71E+11	6,54E+11
<sup>137</sup> Cs	30 ans	661,6	85	1,35E+11	1,33E+11	1,34E+11
<sup>138</sup> Cs	33,4 min	1435,9	76,3	3,07E+11	2,71E+11	3,20E+11
		462,8	30,7	2,91E+11	2,90E+11	3,47E+11
		1009,8	29,8	6,34E+11	6,61E+11	8,14E+11

<sup>138</sup> Cs	33,4 min	2218	15,2	2,10E+12	2,28E+12	2,81E+12
		547	10,8	9,32E+11	9,28E+11	1,11E+12
<sup>131</sup> I	8 j	364,5	81,2	9,59E+10	9,39E+10	9,37E+10
		637	7,1	1,54E+12	1,50E+12	1,50E+12
		284,3	6,14	1,31E+12	1,31E+12	1,29E+12
		722,9	1,8	6,95E+12	6,83E+12	6,83E+12
<sup>132</sup> I	2,3 h	667,7	98,7	1,19E+11	1,18E+11	1,23E+11
		772,6	75,6	1,82E+11	1,81E+11	1,90E+11
		954,6	17,6	1,00E+12	1,03E+12	1,08E+12
		522,7	16	5,88E+11	5,73E+11	5,93E+11
		630,2	13,3	8,53E+11	8,43E+11	8,79E+11
<sup>133</sup> I	20,9 h	529,9	86,3	1,10E+11	1,07E+11	1,07E+11
		875,3	4,5	3,49E+12	3,51E+12	3,56E+12
		1298,2	2,3	8,92E+12	7,54E+12	7,43E+12
		706,6	1,5	8,25E+12	8,05E+12	8,09E+12
		1236,4	1,5	1,46E+13	1,38E+13	1,40E+13
<sup>134</sup> I	52,5 min	847	95,4	1,56E+11	1,59E+11	1,81E+11
		884,1	64,9	2,40E+11	2,44E+11	2,77E+11
		1072,6	15	1,51E+12	1,60E+12	1,84E+12
		595,4	11,2	9,38E+11	9,27E+11	1,04E+12
		621,8	10,6	1,03E+12	1,02E+12	1,15E+12
<sup>135</sup> I	6,6 h	1260,4	28,7	7,30E+11	6,58E+11	6,61E+11
		1131,5	22,6	1,16E+12	1,24E+12	1,29E+12
<sup>135</sup> I	6,6 h	1678	906	2,35E+12	2,29E+12	2,34E+12
		1457,6	8,7	2,62E+12	2,29E+12	2,28E+12
		1038,8	7,9	2,55E+12	2,66E+12	2,75E+12

**Tableau 4-12 : AMD en Bq.m<sup>-3</sup> pour un temps d'acquisition de 10 minutes avec la diode GEM40P**

### 4.3.3 Faisabilité de la spectrométrie gamma

Afin de statuer sur la faisabilité de cette spectrométrie gamma, il est nécessaire de comparer les AMD calculées précédemment à des activités de produits de fission crédibles et faisant suite à une rupture de gaine au niveau du prélèvement envisagé au-dessus des assemblages. Une telle approche par spectrométrie gamma n'ayant jamais été implémentée, la littérature ne nous permet pas de dégager les éléments de comparaison nécessaires. En effet, les différents retours d'expériences traitant des relâchements de produits de fission suite à une rupture de gaine s'appuient essentiellement, pour les mesures les plus rapides, sur l'analyse des gaz contenus dans le ciel de pile ou dans le gaz vecteur suite à un dégazage du sodium [30] [49] [22] [79] [80] [60]. Des méthodes de *gamma scanning* sur des prélèvements de sodium [30] et des analyses radiochimiques (prélèvements TASTENA) sont utilisées pour des mesures en différé [49] [80] [20] [81]. Des examens post irradiation des aiguilles combustible sont également réalisés [30].

La mesure des produits de fission relâchés dans le sodium dans les premiers instants d'une rupture n'est pas accessible.

Un modèle est actuellement en développement au CEA/DEN/DER/LDCI afin de modéliser le rejet des produits de fission gazeux hors de l'aiguille combustible en cas de rupture de gaine [82]. Nous nous appuyons ici sur les premiers développements de ce modèle pour dégager des éléments de comparaison et des premières conclusions sur la faisabilité de l'approche par spectrométrie gamma.

#### 4.3.3.1 Description du modèle [82]

Le modèle présenté ici consiste à déterminer la quantité de produits de fission gazeux rares (xénon et krypton) relâchés en dehors de l'aiguille combustible en cas de rupture de gaine sur une aiguille centrale du cœur CFV3 envisagé pour le prototype ASTRID. La modélisation se décompose en plusieurs étapes :

- Création et diffusion des produits de fission dans le combustible
- Accumulation dans les volumes libres (espace pastilles-gaine et vases d'expansion)
- Relâchement au travers de la fuite

Différents paramètres comme la température du combustible et la taille de la fuite sont pris en compte dans ce modèle. L'évolution du combustible sous flux et donc la création de produits de fission est issue d'un calcul DARWIN [83]. Les flux rapides au niveau des différentes zones fissiles et fertiles du combustible sont issus d'un calcul réalisé à l'aide du code de calcul Monte-Carlo TRIPOLI-4<sup>9</sup>.

##### 4.3.3.1.1 Diffusion dans le combustible

L'évolution de la concentration d'un produit de fission  $x$  dans le combustible en fonction de la position  $r$  et du temps  $t$  est définie selon l'équation (4.36):

$$\frac{\partial C_x(r, t)}{\partial t} = -divj_x(r, t) - \lambda_x C_x(r, t) + \dot{Q}_x(r, t) \quad (4.36)$$

Avec  $\lambda_x$  la constante de désintégration et  $\dot{Q}_x$  le terme source correspondant à l'isotope  $x$ . Ce dernier comprend :

- Sa création comme produit de fission
- Sa formation par capture neutronique

---

<sup>9</sup> TRIPOLI-4 est le code de calcul de transport Monte-Carlo développé au CEA permettant d'effectuer des calculs neutroniques et photoniques pour la radioprotection ou la physique des cœurs.

- Sa formation par décroissance du père

$j_x$  le vecteur densité de courant défini selon l'équation (4.37):

$$j_x(r, t) = -D_x(r, t) \text{grad} C_x(r, t) \quad (4.37)$$

Avec  $D_x$  le coefficient de diffusion du produit de fission  $x$  dans le combustible. Afin de faciliter les calculs de diffusion, l'hypothèse d'un combustible massif cylindre est réalisée. La formation de voies de transport privilégiées pour les produits de fission gazeux au niveau des joints de grains n'est ici pas prise en compte. En considérant des conditions limites exprimées en (4.38) traduisant des concentrations nulles au début de l'irradiation, une absence d'absorption à la surface du combustible et l'absence de singularité en  $r = 0$ , il est alors possible de résoudre l'équation (4.36) (problème de Sturm-Liouville) et d'exprimer la quantité de noyaux  $x$  quittant le combustible par unité de surface et de temps par le vecteur densité de courant  $j_x(r_0, t)$  (4.39).

$$\begin{aligned} C_x(r, 0) &= 0 \\ C_x(r_0, t) &= 0 \\ \left( \frac{\partial C_x(r, t)}{\partial r} \right)_{r=0} &= 0 \end{aligned} \quad (4.38)$$

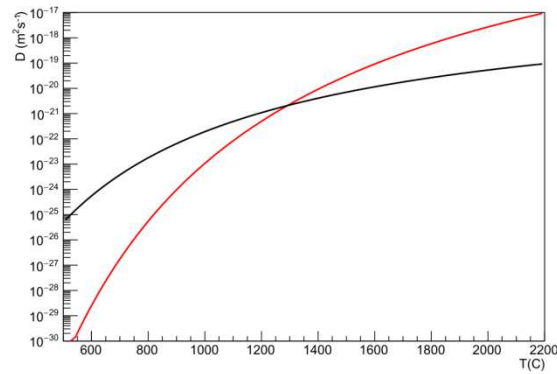
$$j_x(r_0, t) = -D_x \left( \frac{\partial C_x(r, t)}{\partial r} \right)_{r=r_0} \quad (4.39)$$

Les coefficients de diffusion retenus pour le xénon et le krypton sont exprimés en  $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  [84] :

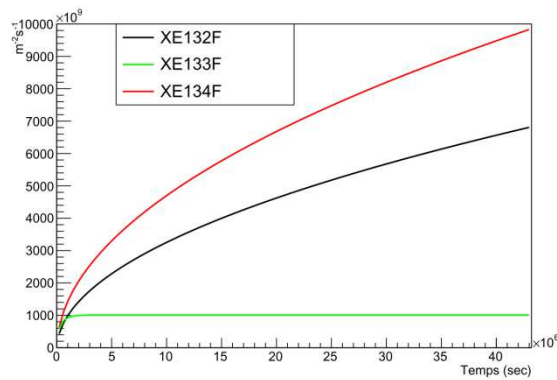
$$\begin{aligned} Xe : D &= 2,0 \cdot 10^{-11} e^{\frac{-3,1 \text{ eV}}{kT}} \\ Kr : D &= 6,7 \cdot 10^{-17} e^{\frac{-1,4 \text{ eV}}{kT}} \end{aligned} \quad (4.40)$$

Avec  $T$  la température et  $k$  la constante de Boltzmann. Comme illustré en (4.40), le coefficient de diffusion des différents isotopes dans le combustible est dépendant de la température de ce dernier. L'hypothèse d'une température constante est implémentée dans le modèle. La température moyenne retenue dans le combustible est de  $1300^\circ\text{C}$ . Les coefficients de diffusion sont ainsi constants dans l'ensemble du combustible. La Figure 4-23 illustre la forte influence de la température sur les coefficients de diffusion. Le relâchement en dehors du combustible pour trois isotopes du xénon en fonction du temps est indiqué en Figure 4-24. Un relâchement toujours plus important est constaté pour le xénon 132 stable et le xénon 134 de période très élevée ( $T_{1/2} = 10^{16}$  ans). En revanche un équilibre est atteint concernant le xénon 133 ( $T_{1/2} = 5,2$  jours). Notons également les fortes variations de  $j$  avec la température. Prenons pour exemple le xénon 133 et le xénon 135 avec des écarts sur  $j$  de l'ordre de trois décades pour des valeurs de température de  $1000^\circ\text{C}$  et  $2000^\circ\text{C}$ . La température retenue de  $1300^\circ\text{C}$  pour ce modèle est donc

potentiellement source de biais non négligeables concernant la diffusion des différents produits de fission.



**Figure 4-23 : Dépendance des coefficients de diffusion du krypton (noir) et du xénon (rouge) en fonction de la température [82]**



**Figure 4-24 : Valeur de  $j$  pour trois isotopes du xénon [82]**

#### 4.3.3.1.2 Accumulation dans les volumes libres

Le nombre d'atomes  $N_x$  du produit de fission  $x$  présent dans les volumes libres est déterminé par :

- Les atomes provenant de la migration depuis le combustible
- La décroissance de l'isotope  $x$
- La décroissance du père  $I$  (iode pour le xénon et brome pour le krypton)
- Le retour à l'état fondamental du métastable  $M$

La décroissance du père vers l'état métastable ainsi que les captures radiatives, négligeables, sont ignorées dans ce modèle. Les quantités de produits de fission dans les volumes libres obéissent donc aux équations suivantes :



$$\begin{aligned}\frac{dN_x(t)}{dt} &= -\lambda_x N_x(t) + \lambda_I N_I(t) + \lambda_M N_M(t) + S j_x(t) \\ \frac{dN_M(t)}{dt} &= -\lambda_M N_M(t) + S j_M(t) \\ \frac{dN_I(t)}{dt} &= -\lambda_I N_I(t) + S j_I(t)\end{aligned}\tag{4.41}$$

Avec  $S$  la surface latérale du combustible. La taille des atomes influant sur le phénomène de diffusion, les coefficients de diffusion de l'iode et du brome sont considérés dans le modèle comme identiques à ceux du xénon et du krypton respectivement. Le système peut alors être résolu en prenant pour condition initiale des volumes libres vides de tous produits de fission à l'instant  $t_0$ .

#### 4.3.3.1.3 Relâchement au travers de la fuite

Le relâchement des isotopes au travers de la fuite est modélisé via la théorie sur le débit de fuite [85]. Celle-ci est caractérisée par son flux gazeux  $q$  lié au nombre d'atomes passant au travers de la fuite par unité de temps :

$$q = k_b T \frac{dn}{dt}\tag{4.42}$$

Avec  $k_b$  la constante de Boltzmann et  $T$  la température. Différents types d'écoulements des gaz sont envisagés dans ce modèle, on distinguera :

- L'écoulement moléculaire
- L'écoulement laminaire (ou visqueux)
- L'écoulement intermédiaire

Chaque écoulement est caractérisé par un nombre de Knudsen  $K_n$  compris dans une plage de valeurs :

$$K_n = \frac{d_f}{l}\tag{4.43}$$

Avec  $d_f$  la dimension de la fuite considérée comme cylindrique dans ce modèle et  $l$  le libre parcours moyen des gaz défini comme :

$$l = \frac{k_b T}{\sqrt{2\pi} d^2 P}\tag{4.44}$$

Avec  $d$  le diamètre de l'atome et  $P$  la pression du gaz. Ainsi, pour  $K_n < 1$ , nous parlerons d'écoulement moléculaire car  $l$  est grand devant  $d_f$  et les collisions entre atomes sont alors négligées. Une valeur de  $K_n$  supérieure à 200 correspond à un écoulement laminaire.

L'écoulement intermédiaire entre moléculaire et laminaire correspond à une valeur de  $K_n$  comprise entre 1 et 200. A chaque type d'écoulement correspondent les flux gazeux  $q_M$ ,  $q_L$  et  $q_I$  dont les expressions ne seront pas détaillées ici (cf. [82]). Notons simplement que ceux-ci sont dépendants de la pression  $P$  et que  $q_I$  est une fonction de  $q_M$  et  $q_L$ . La quantité d'hélium gazeux dans les volumes libres étant estimée entre deux et trois ordres de grandeur au-dessus de celle des produits de fission gazeux, le modèle considère un relâchement au travers de la fuite piloté par celui de l'hélium gazeux. Les quantités de produits de fission gazeux sont déterminées par conservation de leurs abondances relatives. Deux facteurs influent sur la variation de la pression  $P$  au cours du temps :

- Le relâchement gazeux au travers de la fuite
- L'émission de gaz dans les volumes libres depuis le combustible

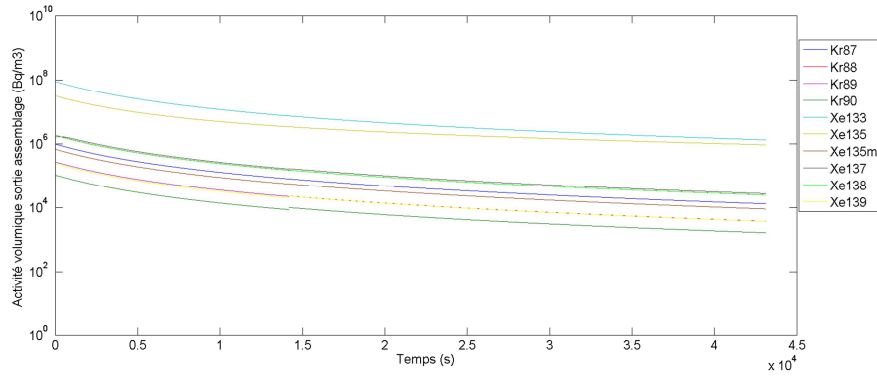
L'évolution de la pression  $P$  dans les volumes libres peut alors être définie de la manière suivante :

$$V \frac{dP}{dt} = \alpha k_b T - q(P) \quad (4.45)$$

Avec  $V$  le volume des vases d'expansion et  $\alpha$  le taux de production d'hélium supposé constant. La résolution de l'équation (4.45) permet alors de déterminer l'expression de  $q(t)$  et ainsi le relâchement des gaz de fission hors du combustible (équation (4.42)).

#### 4.3.3.2 Activités relâchées

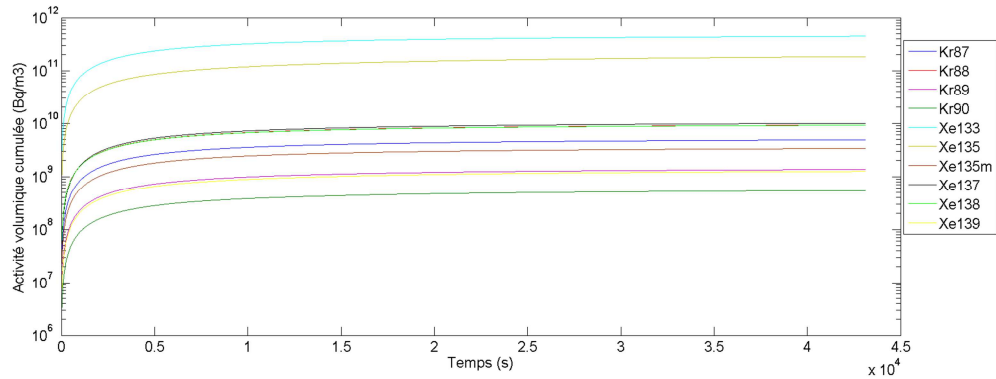
L'exemple pris ici concerne une rupture de gaine de diamètre  $df = 10 \mu m$  au milieu de la zone fissile supérieure d'une aiguille centrale du cœur CFV3 au bout d'un cycle de 410 jours. Le modèle décrit ci-dessus permet de remonter à la cinétique de relâchement de produits de fission en dehors de l'aiguille au niveau de la brèche. Nous faisons ici l'hypothèse que les produits de fission gazeux sont entraînés par le sodium circulant le long de l'aiguille jusqu'en haut de cette dernière avant d'être dilués de manière homogène dans l'ensemble du sodium ayant transité dans l'assemblage composé des 217 aiguilles. La valeur de 27,6 kg/s [86] pour le débit de sodium dans l'assemblage entier est ici retenue soit 33,7 L/s en considérant une température de sodium de 550°C (0,82 de densité). Le sodium ainsi homogénéisé est rejeté de l'assemblage en « jet » directionnel vers le haut. L'hypothèse d'une concentration en produits de fission équivalente entre la sortie d'assemblage et le piquage permettant le prélèvement de sodium à la manière d'une LRG est réalisé. La Figure 4-25 illustre les activités volumiques des produits de fission gazeux simulés dans le cadre de cette rupture de gaine en sortie d'assemblage.



**Figure 4-25 : Activités volumiques pour les différents produits de fission gazeux en sortie d'assemblage**

#### 4.3.3.3 Comparaison aux AMD et discussion

La comparaison des activités volumiques calculées en sortie d'assemblage présentées en Figure 4-25 aux AMD calculées dans la section 4.3.2 illustre la difficulté de la spectrométrie gamma étudiée avec des AMD supérieures de plusieurs ordres de grandeur. Néanmoins ce constat s'applique à un premier résultat de simulation, basé sur une taille d'ouverture de la gaine de 10  $\mu\text{m}$  prise arbitrairement. La Figure 4-26 illustre le cumul des activités relâchées dans le temps pouvant illustrer un relâchement des gaz rares de fission plus violent, notamment en raison d'un défaut au niveau de la gaine de plus grande taille.



**Figure 4-26 : Activités volumiques relâchées cumulées dans le temps**

Il existe alors un relâchement seuil à partir duquel est observée une compatibilité avec les AMD pour le xénon 133 et le xénon 135 et pour des temps d'acquisition inférieurs à 10 minutes. Ce seuil correspond à un relâchement instantané équivalent à environ 75 minutes de relâchement dans le cas de la fuite de 10  $\mu\text{m}$  modélisée. Les relâchements des autres produits de fission gazeux, plus faibles, apparaissent non compatibles avec les AMD. Le Tableau 4-13 récapitule les AMD atteintes avec les deux diodes et les activités volumiques en sortie d'assemblage issues de la modélisation pour le xénon 133 et le xénon 135.

	$^{133}\text{Xe}$	$^{135}\text{Xe}$
AMD GR2021	$2 \cdot 10^{11} \text{ Bq.m}^{-3}$	$9 \cdot 10^{10} \text{ Bq.m}^{-3}$
AMD GEM40P	$2,1 \cdot 10^{11} \text{ Bq.m}^{-3}$	$8,1 \cdot 10^{10} \text{ Bq.m}^{-3}$
Activité vol. modèle 10 $\mu\text{m}$	$8,9 \cdot 10^7 \text{ Bq.m}^{-3}$	$3,1 \cdot 10^7 \text{ Bq.m}^{-3}$
Activité vol. modèle intégré durant 75 min	$2,3 \cdot 10^{11} \text{ Bq.m}^{-3}$	$8,1 \cdot 10^{10} \text{ Bq.m}^{-3}$

**Tableau 4-13 : AMD pour les deux diodes pour un temps d'acquisition de 10 minutes et activités volumiques en sortie d'assemblage découlant du modèle**

Notons également que ces relâchements sont modélisés pour une température moyenne du combustible de 1300°C. Or, comme déjà mentionné dans la section 4.3.3.1.1, la température du combustible influe rapidement sur la diffusion des produits de fission vers la périphérie de celui-ci et donc également sur le stock accumulé dans les vases d'expansion à un instant donné. Une diffusion des gaz dans le combustible plus importante que celle issue de l'hypothèse de température constante implémentée dans ce modèle serait responsable d'un relâchement dans le sodium primaire plus conséquent.

## 4.4 Conclusion

En raison des limites que présente l'instrumentation nucléaire pour la détection de rupture de gaine en filière sodium, deux voies d'étude principalement basées sur des simulations Monte Carlo ont été investiguées dans ce chapitre. La première vise à optimiser la réponse des blocs DND déjà implémentés sur la filière sodium. La deuxième est orientée vers l'étude de faisabilité d'une nouvelle mesure, plus ambitieuse technologiquement, et reposant sur une approche de spectrométrie gamma hauts taux de comptage sur le sodium primaire.

Le retour d'expérience d'anciens RNR-Na tels que PHENIX et SUPERPHENIX ainsi que les simulations MNCPX exposées dans ce chapitre démontrent une production conséquente de photoneutrons représentant une nuisance importante pour la mesure DND. Cette étude démontre qu'il est possible d'envisager une conception de poste de mesure DND sans matière hydrogénée, afin de supprimer le bruit lié aux photoneutrons. Le graphite a ici été étudié comme matériau de substitution. En effet, son bon pouvoir modérateur ainsi que son seuil de réaction photonucléaire plus élevé en font un bon candidat de remplacement du polyéthylène. Les simulations menées via le code de calcul MCNPX montrent qu'un poste de mesure DND utilisant le graphite comme modérateur permettrait d'atteindre des performances supérieures en termes d'amplitude de signal neutron et de temps d'acquisition en supprimant la contribution photoneutronique. Un tel système apparaît donc comme une solution prometteuse pour les systèmes de détection de ruptures de gaines des futurs RNR-Na. Un dispositif expérimental a

également été mis en place et a permis de valider en partie les simulations MCNPX d'un poste de mesure neutron à compteur hélium 3 utilisant du carbone comme modérateur.

L'étude de faisabilité de la spectrométrie gamma sur le sodium primaire est motivée par la possibilité d'enrichir la détection de rupture de gaine par le suivi potentiel de l'ensemble des radioéléments émetteurs gamma le plus précocement possible. La faisabilité de cette mesure, occultée par le passé en raison de l'environnement sévère que représentent les activités importantes liées aux produits d'activation pour les chaînes de spectrométrie gamma, peut être reconsidérée du fait des progrès réalisés dans le domaine de l'instrumentation nucléaire. L'implémentation de la chaîne de spectrométrie gamma hauts taux comptages ADONIS, développée par le CEA LIST, constitue une voie d'intérêt potentielle pour réaliser ce type de mesures en présence d'une forte ambiance gamma due aux produits d'activation. Après avoir identifié les principaux produits de fission relâchés dans les premiers instants d'une rupture, un poste de mesure impliquant un détecteur HPGe en regard d'une capacité cylindrique destinée à recevoir l'échantillon de sodium suite à un prélèvement en sortie d'assemblages de type LRG est simulé à l'aide du code MCNP. La réponse de la diode HPGe aux activités des produits d'activation est modélisée en implémentant les caractéristiques de la chaîne ADONIS. Un taux de comptage incident élevé de l'ordre de  $3 \cdot 10^5$  cps, valeur optimale en termes de maximisation du taux de comptage sortant et de minimisation de l'empilement dans le spectre, est ici considéré. Les limites de détection et les activités minimales détectables pour les produits de fission d'intérêt sont calculées à partir de la réponse de la diode HPGe aux produits d'activation et des régions d'intérêt des pics d'absorption totale des radioéléments susceptibles d'être détectés dans le spectre en cas de rupture de gaine. L'influence de l'efficacité de détection de la diode HPGe, du temps d'acquisition et du temps de transit de l'échantillon de sodium de la cuve au poste de mesure sont étudiés. Ces AMD, oscillant entre quelques dizaines de  $\text{GBq}\cdot\text{m}^{-3}$  et quelques  $\text{TBq}\cdot\text{m}^{-3}$  pour la plupart, demeurent importantes en raison de l'activité significative des produits d'activation et particulièrement du sodium 24. Ces AMD sont comparées à des résultats de simulation issus d'un modèle de rejet de produits de fission gazeux hors des aiguilles combustible d'ASTRID en cas de rupture de gaine. Il faut noter que ce modèle est actuellement en cours de développement au CEA Cadarache. Les premiers calculs traitant le cas d'une rupture de  $10 \mu\text{m}$  sur une aiguille centrale du cœur d'ASTRID laissent apparaître un relâchement progressif des gaz de fission. Ce dernier ne permet pas d'atteindre des activités volumiques en sortie d'assemblage compatibles avec les AMD calculées. Néanmoins, il est important de souligner que d'autres configurations de rupture de gaine seraient à étudier, notamment avec des défauts au niveau de la gaine de taille plus importante. En effet, si une vidange des vases d'expansion dans le sodium plus intense est envisagée, certains produits de fission, comme le xénon 133 et le xénon 135, pourraient atteindre des activités volumiques en sortie d'assemblage compatibles avec les AMD calculées. Le relâchement prévu par le modèle

est également très dépendant de l'hypothèse réalisée sur la température du combustible. Si la faisabilité de cette spectrométrie gamma peut apparaître délicate au vu des premiers résultats, ces derniers ne permettent pas de statuer de manière définitive sur la faisabilité ou non-faisabilité d'une telle approche. D'autres scénarios de rupture de gaine avec des brèches plus importantes sont à investiguer et une implémentation d'une chaîne de spectrométrie gamma hauts taux de comptage sur une boucle sodium dans le futur apporterait des éléments supplémentaires concernant cette faisabilité.

# 5 LES TECHNOLOGIES POUR LA SPECTROMETRIE GAMMA

## 5.1 Introduction

Ce chapitre est dédié à la présentation des outils de spectrométrie gamma, et plus particulièrement ceux utilisés pour ce travail. Il présente plus particulièrement les choix technologiques réalisés pour l'application visée, à savoir le suivi de ruptures de gaines. Les méthodes conventionnelles de traitement des impulsions gamma et d'analyse de spectres sont exposées et leurs limitations sont discutées au vu des contraintes de très hauts taux de comptage, de variations d'activités et de richesses des spectres qui peuvent découler d'une rupture de gaine. Des outils développés au sein du CEA LIST plus à même de répondre aux exigences que représente le suivi de ruptures de gaines sont présentés et font l'objet d'une comparaison avec les outils conventionnels disponibles commercialement. Les algorithmes développés durant cette thèse, dans le but d'assurer un suivi temporel des ruptures de gaines, sont également présentés.

## 5.2 Les chaînes de spectrométrie gamma et le traitement des impulsions HPGe

### 5.2.1 Principe [78], [87], [88]

Les charges issues de l'ionisation du milieu de détection faisant suite à l'interaction rayonnement-matière, dans notre cas le cristal de germanium, sont collectées au niveau des électrodes par le préamplificateur de charge. Comme son nom pourrait le laisser penser, sa fonction n'est pas d'amplifier le signal mais bien d'intégrer les faibles courants issus de la collecte de charges. Deux types de préamplificateurs sont disponibles:

- Le préamplificateur à contre réaction résistive
- Le préamplificateur à contre réaction pulsée (i.e. « reset »)

Le premier a pour principal inconvénient de saturer en cas de hauts taux de comptage. La dynamique de tension acceptable sature par effet d'empilement. De plus, il introduit un bruit électronique de Johnson supplémentaire lié à la résistance de contre réaction. Dans le second, la résistance de contre réaction est supprimée, réduisant le bruit électronique. L'intégration est rendu insaturable par un retour pulsé à la ligne de base.

Les impulsions sont ensuite numérisées afin d'être filtrées, quantifiées et histogrammées. Si un traitement analogique des signaux est possible, les fréquences d'échantillonnages envisageables aujourd'hui permettent un traitement numérique sans perte d'information et sans dégradation de la résolution en énergie attendue en spectrométrie gamma. L'analyseur numérique permet de réaliser les trois principales étapes suivantes :

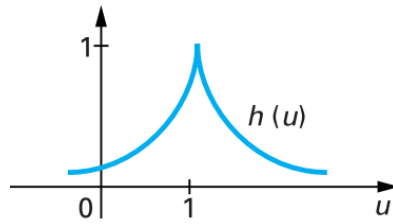
- Échantillonner les impulsions issues de préamplificateur via un convertisseur analogique numérique (CAN)
- Débruiter les séquences d'échantillons via un filtre numérique adapté
- Histogrammer les signaux pour la construction du spectre proprement dit

Les impulsions issues du préamplificateur ne sont pas exploitables en l'état pour la mesure spectrométrique en raison notamment du bruit électronique. Afin d'estimer au mieux la position des pics d'absorption totale via une résolution en énergie optimale, il est nécessaire de maximiser le rapport signal sur bruit et donc de débruiter au mieux les signaux. Les impulsions sont dans un premier temps différenciées dans le cas d'un préamplificateur à transistor reset puis sont échantillonnées via un convertisseur analogique numérique (CAN) à une fréquence minimale de 10 MHz avant d'être débruitées grâce à un filtrage numérique de type linéaire à réponse impulsionnelle finie (RIF). Le filtrage RIF va mettre en forme l'impulsion d'entrée  $f$  par la convolution à une réponse impulsionnelle  $h$  telle que l'impulsion mise en forme  $g$  devienne :

$$g(t) = \int_0^{+\infty} h(u) f(t - u) du \quad (5.1)$$

Le filtrage utilisé est choisi en fonction de sa valeur de bruit relatif  $\frac{\eta}{\eta_{idéal}}$  qui est un indicateur du bruit lié au filtrage relativement à une réponse impulsionnelle idéale de type *cusp*.





**Figure 5-1 : Réponse impulsionnelle cusp [88]**

Plus la valeur du bruit relatif est proche de 1, plus les impulsions sont débruitées et meilleure est la résolution finale en énergie. Le filtrage le plus fréquemment implémenté s'approche d'un filtrage de type triangulaire ( $\frac{\eta}{\eta_{idéal}} = 1,07$ ). Ce filtre présente cependant l'inconvénient d'être sensible à l'étalement des impulsions notamment lié au phénomène de déficit balistique particulièrement observé dans les grands détecteurs, c'est pourquoi on lui préfère un filtre de type trapézoïdal ( $\frac{\eta}{\eta_{idéal}} = 1,34$ ) dont le réglage de la durée du plateau (*flat top*) permet d'intégrer l'ensemble de la charge. Une intégration non complète a pour conséquence l'apparition d'une traîne basse énergie sur les pics d'absorption totale. Le temps de montée du filtre trapézoïdal (*rise time*) influe directement sur la qualité du débruitage en réduisant la composante du bruit blanc du signal. Si un long *rise time* favorise un meilleur débruitage, cette option va à l'encontre d'un temps de traitement rapide des impulsions dans le cas des hauts taux de comptages. Un compromis entre résolution en énergie et temps mort est donc nécessaire dans ces cas.

Les valeurs maximales des impulsions ainsi mises en forme et débruitées sont proportionnelles à l'énergie déposée au sein du détecteur. Celles-ci sont ensuite codées dans un histogramme en énergie pour former le spectre.

### 5.2.2 Limitations

Le réglage du filtre de type RIF permet d'optimiser la mesure pour une forme d'impulsions donnée. Ce type de traitement nécessite donc une phase d'optimisation du filtre par l'utilisateur en fonction de la sortie du préamplificateur. Malgré cette dernière, des limitations apparaissent avec un tel traitement. La gestion des changements d'activités brutales est délicate et peut être à l'origine de biais sur la mesure des taux de comptage. Les mesures à hauts taux de comptage présentent également des difficultés puisque ceux-ci entraînent une augmentation de la proportion des impulsions empilées. Une dégradation de la mesure est alors observée avec notamment :

- une perte de la résolution en énergie
- une augmentation du temps mort
- une perte de statistique avec la diminution du taux de comptage en sortie de la chaîne par rapport au taux de comptage incident (diminution du taux de transfert)

- l'apparition de pics somme parasitant l'analyse du spectre
- un fond spectral plus important dans la région des hautes énergies lié à l'empilement

Afin de limiter ces différents biais, différentes méthodes sont implémentées :

- La réduction de la constante de temps du filtrage : il est de cette manière possible de réduire l'empilement des impulsions par un traitement plus rapide de ces dernières au prix d'un débruitage moins efficace et donc d'une résolution dégradée. Un compromis est donc nécessaire.
- Le *Pile Up Rejection* (PUR) : le système PUR permet de ne pas encoder les impulsions identifiées comme empilées avec pour avantage la limitation des dégradations spectrales (pics somme et fond aux hautes énergies). Dans la pratique, une voie supplémentaire « rapide » est généralement implémentée en parallèle de la voie permettant la mise en forme des impulsions. Cette voie rapide permet de réaliser un déclenchement sur l'instant d'arrivée des impulsions. Il est donc possible d'éliminer une impulsion lorsqu'une impulsion suivante est détectée sur la voie rapide durant le temps de traitement de la première. Cette méthode permet de limiter l'empilement mais ne permet pas dans la pratique de le supprimer puisque deux événements arrivant dans un intervalle de temps très court, inférieur à la résolution temporelle de la voie rapide, ne sont pas discriminés. Contrairement au traitement analogique, la numérisation des signaux permet d'aller au-delà du simple rejet des impulsions en rendant possible la reconstruction des impulsions individuelles empilées. Cependant, ces traitements sont gourmands en temps de calcul et sont donc difficilement implémentables dans un dispositif en ligne.
- Le *Live Time Corrector* (LTC) : la perte d'impulsions liée au temps mort de la chaîne est compensée par l'estimation du temps actif de la chaîne de mesure plutôt que du temps réel d'acquisition. Cependant, un biais apparaît aux hauts taux de comptage dans l'estimation de ce temps actif en raison de la différence de formes entre les impulsions issues du détecteur et les impulsions liées à l'horloge du système permettant de déterminer le temps actif de la chaîne de mesure.
- Le *Loss-Free Counting* (LFC) : cette méthode permet de compenser les impulsions perdues en raison du temps mort de la chaîne de mesure. Des coups sont ajoutés artificiellement dans le spectre à partir de la connaissance en temps réel du temps mort. Dans la pratique, un générateur d'impulsions virtuelles est utilisé afin de « questionner » la chaîne de mesure sur sa disponibilité [89]. Cependant, cette méthode présente l'inconvénient de construire des spectres ne répondant plus aux critères de la statistique Poisson en raison des  $n$  coups ajoutés ( $n$  reflétant le temps mort de la chaîne

à un instant donné et correspondant au rapport entre temps réel et temps actif sur la période considérée). D'autres parades ont été développées afin de retrouver les différentes incertitudes de mesure [90].

Ces parades permettent de compenser en partie les lacunes des chaînes de spectrométrie dans le traitement des hauts taux de comptage et des variations brusques d'activités. Néanmoins, si elles permettent d'étendre les plages de fonctionnement de ces chaînes, ces différentes corrections possèdent également leurs limites et nécessitent souvent un réglage complexe. Afin d'appréhender les hauts taux de comptage et les variations rapides d'activités attendus avec une spectrométrie gamma réalisée sur le sodium primaire lors de la détection d'une rupture de gaine, une nouvelle approche est envisagée via le concept ADONIS et son filtre non linéaire à réponse impulsionnelle infinie permettant de s'adapter à n'importe quelle forme d'impulsion.

## 5.3 La chaîne de spectrométrie ADONIS

### 5.3.1 Le modèle d'état

ADONIS implémente une modélisation du signal lié aux impulsions HPGe au travers d'un modèle d'état discret décrit par un jeu de deux équations :

- L'équation d'état qui lie l'état du système  $X_{k+1}$  à l'état  $X_k$  l'instant  $k$  et à  $W_k$  une composante de bruit
- L'équation d'observation permettant le calcul de la sortie en fonction de l'état du système à l'instant  $k$  et d'une composante de bruit

$$\begin{aligned} X_{k+1} &= FX_k + W_k \\ Y_k &= HX_k + V_k \end{aligned} \tag{5.2}$$

$X_k$  est le vecteur d'état,  $Y_k$  est le vecteur d'observation.  $W_k$  et  $V_k$  sont deux contributions de bruits blancs gaussiens indépendantes modélisant des signaux bruités [91].  $F$  et  $H$  sont appelés respectivement matrice d'évolution et matrice d'observation.

Si ce modèle d'état est applicable à de nombreux signaux, une modélisation spécifique aux signaux de spectrométrie gamma a été établie [92]. Dans ce dernier, le vecteur d'état  $X_k$  décrivant les impulsions est composé de la composante  $p_k$  décrivant le courant issu de la collecte de charges suite aux interactions dans le détecteur, du courant de ligne de base  $b_k$  et d'un bruit coloré  $n_k$ .

$$\begin{aligned}
 p_{k+1} &= r_k w_k^p \\
 b_{k+1} &= b_k + w_k^b \\
 n_{k+1} &= -\alpha w_{k+1}^n + w_k^n
 \end{aligned}
 \tag{5.3}$$

$$y_k = p_k + b_k + n_k \tag{5.4}$$

- Les impulsions sont décrites par un bruit blanc gaussien  $w_k^p$  de grande variance  $Q_p$  si la variable  $r_k$  est égale à 1 rendant compte du mode « collecte de charges ». Ce terme est nul si  $r_k$  vaut 0 traduisant l'absence d'évènements.
- $w_k^b$  représente les fluctuations de la composante continue  $b_k$  liée à la ligne de base, sa variance est notée  $Q_b$ .
- Le bruit  $n_k$  de variance  $Q_n$  a une densité spectrale de puissance de la forme :

$$N(\omega) \propto \left(1 + \left(\frac{\omega}{\omega_c}\right)^2\right) \tag{5.5}$$

Avec  $\omega_c$  la pulsation de coupure. Il est modélisé par un bruit blanc gaussien  $w_k^n$  filtré par la fonction de transfert  $H^n(z) = 1 - \alpha z^{-1}$  avec  $\alpha = e^{-T_e \omega_c}$  et  $T_e$  la période d'échantillonnage.

Le vecteur d'état peut se réécrire :

$$X_k = (p_k \ b_k \ n_k \ w_{k-1}^n)^T \tag{5.6}$$

$w_{k-1}^n$  est conservé en mémoire pour des raisons pratiques.

Le vecteur de bruit  $W_k$ , la matrice d'évolution  $F$  et la matrice d'observation  $H$  s'écrivent respectivement :

$$W_k = (w_k^p \ w_k^b \ w_k^n)^T \tag{5.7}$$

$$F = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -\alpha \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \tag{5.8}$$

$$H = (1 \ 1 \ 1 \ 0) \tag{5.9}$$

Le modèle d'état doit également retranscrire les deux modes traduisant soit la collecte de charges (variance de  $W_k$  élevée) soit la non collecte de charge (variance de  $W_k$  faible). Le mode du modèle d'état est traduit par la valeur de la variable  $r_k$  (0 ou 1). Une matrice de bruit dynamique est donc introduite afin de conditionner  $X_k$  en fonction de la valeur de  $r_k$ .

$$B(r_k) = \begin{pmatrix} r_k & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (5.10)$$

La forme générale du modèle d'état présenté en (5.2) prend donc la forme :

$$\begin{aligned} X_{k+1} &= FX_k + B(r_k)W_k \\ Y_k &= HX_k \end{aligned} \quad (5.11)$$

Ce système non linéaire représente la spécificité de la modélisation d'ADONIS permettant ainsi de distinguer au cours du temps les périodes où l'on observe le bruit seul des périodes de collecte de charges. Afin de résoudre ce système et évaluer au mieux  $X_k$ , un lisseur de Kalman bimodal est utilisé.

### 5.3.2 Le filtre de Kalman

Le filtre de Kalman permet d'estimer au mieux, au sens du minimum de variance, l'état du système linéaire 3.1 [93], [94]. L'estimation de l'état à l'instant  $k$   $\hat{X}_{k|k-1}$  et sa covariance associée  $P_{k|k-1}$  sont calculées a priori connaissant l'état  $k - 1$ .

$$\hat{X}_{k|k-1} = F\hat{X}_{k-1|k-1} \quad (5.12)$$

$$P_{k|k-1} = FP_{k-1|k-1}F^T + Q_k \quad (5.13)$$

Avec  $Q_k$  la variance du bruit  $W_k$ .

L'innovation  $\epsilon_k$  est alors définie comme l'écart entre la mesure à l'instant  $k$  et la prédiction de l'état a priori :

$$\epsilon_k = Y_k - H\hat{X}_{k|k-1} \quad (5.14)$$

L'estimation du signal à l'instant  $k$  est déterminée en sommant l'innovation pondérée par le gain de Kalman  $K_k$  à l'estimée  $\hat{X}_{k|k-1}$ . Sa covariance  $P_{k|k}$  est également calculée.

$$\hat{X}_{k|k} = \hat{X}_{k|k-1} + K_k\epsilon_k \quad (5.15)$$

$$P_{k|k} = (I_n - K_kH)P_{k|k-1} \quad (5.16)$$

Le gain de Kalman est calculé grâce à la covariance  $P_{k|k-1}$  et à la covariance de l'innovation  $\Sigma_k$ .

$$\Sigma_k = HP_{k|k-1}H^T + R \quad (5.17)$$

$$K_k = P_{k|k-1}H^T\Sigma_k^{-1} \quad (5.18)$$

Le filtre de Kalman est optimal pour les systèmes linéaires gaussiens mais ne l'est plus pour les systèmes non linéaires comme c'est le cas avec ADONIS. Le lisseur de Kalman bimodal représente une solution sous optimale pour une estimation fiable de  $\hat{X}_{k|k}$  au vu des temps très courts durant lesquels cette estimation doit être réalisée.

### 5.3.3 Le lisseur de Kalman bimodal

Il est nécessaire, afin de résoudre l'équation d'état, de déterminer la variable  $r_k$  ici considérée comme une chaîne de Markov d'ordre 1 à chaque instant  $k$ . L'approche utilisée ici pour résoudre ce problème est un algorithme adapté de l'approximation nommée *hard rejecter* [95]. Celle-ci est particulièrement bien adaptée pour des signaux présentant un grand rapport signal à bruit. Une seule itération permet de déterminer finement  $r_k$  ce qui est favorable à un traitement rapide des signaux spectrométriques. Cet algorithme se présente en deux étapes :

- Un filtrage dans le sens suivant l'arrivée des évènements
- Un lissage dans le sens inverse de la séquence d'évènements, une fois la séquence entière déterminée

#### 5.3.3.1 Le filtrage

Dans cette modélisation, l'état de la variable  $r_k$  détermine le mode dans lequel le filtre se trouve, rendant ainsi compte de la présence ou non d'impulsions dans le signal temporel. A chaque instant  $k$ , la valeur de  $r_k$  est déterminée via un test de comparaison entre la puissance de l'innovation  $\epsilon_k^2$  et sa covariance  $\Sigma_k$ . Le résultat de ce test détermine alors le mode du filtre.

- $r_k$  prend la valeur 0 si la puissance de l'innovation  $\epsilon_k^2$  est inférieure à  $\mu\Sigma_k$ ,  $\mu$  étant un seuil fixé. Le filtre ne voit pas d'impulsions.
- $r_k$  prend la valeur 1 si la puissance de l'innovation  $\epsilon_k^2$  est supérieure à  $\mu\Sigma_k$ . La valeur importante de l'innovation traduit une collecte de charges. Le filtre reconnaît la présence d'une impulsion.

L'algorithme de filtrage est présenté ci-dessous :

**Conditions initiales:**  $k=0$ ,  $r_{0|0}=1$ ,  $Q=Diag(Q_p \ Q_b \ Q_n)$ ,  $\mu$ ,

$$X_{0|0} = \begin{pmatrix} 0 & \hat{b}_0 & 0 & 0 \end{pmatrix}^T, P_{0|0} = E \begin{pmatrix} X_{0|0} & X_{0|0}^T \end{pmatrix}$$

- 1: **tant que**  $k < N$  **faire**
- 2:  $r_{k+1|k} = 0$
- 3:  $\hat{X}_{k+1|k} = F \cdot \hat{X}_{k|k}$
- 4:  $\epsilon_{k+1} = y_{k+1} - H \cdot \hat{X}_{k+1|k}$
- 5:  $P' = F \cdot P_{k|k} \cdot F^T + B(r_{k+1|k}) \cdot Q \cdot B(r_{k+1|k})^T$
- 6:  $\Sigma'_k = H \cdot P' \cdot H^T$
- 7: **si**  $\epsilon_{k+1}^2 \geq \mu \cdot \Sigma'_k$  **alors**
- 8:  $r_{k+1|k+1} = 1$
- 9: **sinon**
- 10:  $r_{k+1|k+1} = 0$
- 11: **fin si**
- 12:  $P_{k+1|k} = F \cdot P_{k|k} \cdot F^T + B(r_{k+1|k+1}) \cdot Q \cdot B(r_{k+1|k+1})^T$
- 13:  $\Sigma_k = H \cdot P_{k+1|k} \cdot H^T$
- 14:  $K_{k+1} = P_{k+1|k} \cdot H^T \cdot \Sigma_k^{-1}$
- 15:  $\hat{X}_{k+1|k+1} = \hat{X}_{k+1|k} + K_{k+1} \cdot \epsilon_{k+1}$
- 16:  $P_{k+1|k+1} = (\mathbb{1}_4 - K_{k+1} \cdot H) \cdot P_{k+1|k}$
- 17:  $k \leftarrow k + 1$
- 18: **fin tant que**

Ce type de filtrage possède l'avantage de s'adapter à la forme de l'impulsion. Aucune mise en forme de l'impulsion n'est nécessaire, la précision dans la datation des évènements est donc accrue permettant un fonctionnement avec les hauts taux de comptage.

### 5.3.3.2 Le lissage

Suite à l'étape de filtrage, la séquence des estimations de  $\hat{X}_k$  est remontée en sens inverse afin d'affiner ces estimations via une étape de lissage. Ce lissage s'effectue via l'algorithme de Bryson et Frazier [96]. L'algorithme de lissage est présenté ci-dessous :

**Conditions initiales:**  $k=N$ ,  $\lambda_{N+1|N}=0$ ,  $\Lambda_{N+1|N}=0$

- 1: **tant que**  $k > 0$  **faire**
- 2:  $F_k = F - K_k \cdot H$
- 3:  $\lambda_{k|N} = F_k^T \cdot \lambda_{k+1|N} + H^T \cdot V_k^{-1} \cdot \epsilon_k$
- 4:  $\Lambda_{k|N} = F_k^T \cdot \Lambda_{k+1|N} \cdot F_k + H^T \cdot V_k^{-1} \cdot H_k$
- 5:  $\hat{X}_{k|N} = \hat{X}_{k|k-1} + P_{k|k-1} \cdot \lambda_{k|N}$
- 6:  $P_{k|N} = P_{k|k-1} - P_{k|k-1} \cdot \Lambda_{k|N} \cdot P_{k|k-1}$
- 7:  $k \leftarrow k - 1$
- 8: **fin tant que**

### 5.3.3.3 Construction des évènements

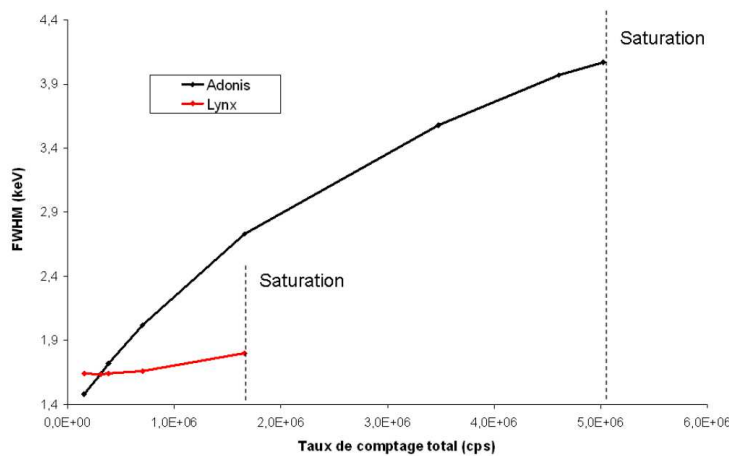
A partir des séquences  $r_k$  et  $X_k$  déterminée précédemment, la datation des évènements, le temps de collecte des charges et l'énergie déposée sont déterminés avec précision permettant pour chaque évènement  $n$  de construire le triplet  $(\mathcal{E}_n \mathcal{D}_n \mathcal{T}_n)$  avec :

- $\mathcal{E}_n$  l'énergie de l'évènement  $n$ ,
- $\mathcal{D}_n$  le temps d'occupation du système suite à l'évènement  $n$ ,
- $\mathcal{T}_n$  l'instant auquel l'évènement  $n$  intervient

### 5.3.3.4 Performances d'ADONIS

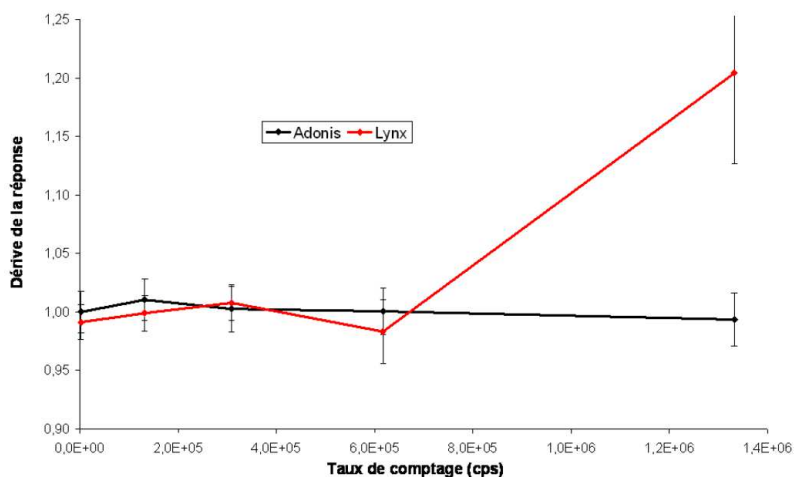
L'atout majeur de l'approche ADONIS réside dans l'absence de mise en forme du signal, permettant ainsi de s'adapter à n'importe quelle forme d'impulsion et de rester opérationnel même en présence de hauts taux de comptage comme illustré dans l'étude [97] ainsi que dans les essais menés sur la boucle ISABELLE-1 lors de cette thèse qui seront détaillés dans le chapitre 6. Ce non conditionnement des impulsions confère également à ADONIS la capacité de traiter les variations brusques d'activités. Les seuls réglages d'ADONIS nécessaires concernent les paramètres  $Q_b$ ,  $Q_n$ ,  $\alpha$  et  $\mu$  présentés précédemment. Ces réglages sont propres au détecteur HPGe utilisé et ne nécessitent pas d'être modifiés selon les activités environnantes. ADONIS s'auto-adapte aux signaux afin de les débruiter de manière optimisée. De plus, l'intégration des impulsions sur une plage temporelle correspondant strictement au temps de collecte des charges permet de supprimer le déficit balistique et de garantir l'énergie correspondant aux pics somme.

Les performances d'ADONIS ont fait l'objet de deux études. La première concerne sa stabilité métrologique [75] tandis que la deuxième porte sur une comparaison avec des analyseurs conventionnels [97]. Les principaux résultats de cette dernière étude comparative sont résumés sur la Figure 5-2 et la Figure 5-3.



**Figure 5-2 : Evolution de la FWHM en fonction du taux de comptage total pour le pic à 59 keV de l'américium 241 [97]**





**Figure 5-3 : Dérive de l'aire nette en fonction du taux de comptage total (source référence :  $^{60}\text{Co}$  ; source parasite :  $^{137}\text{Cs}$ ) [97]**

Contrairement au traitement conventionnel où la résolution est optimisée par un filtrage paramétré en fonction de la forme de l'impulsion, ADONIS s'adapte à la forme de l'impulsion et reste ainsi opérationnel jusqu'à cinq millions de coups par seconde, même si une dégradation de la résolution en énergie est toutefois observée. La quantification des impulsions est également garantie avec ADONIS jusqu'à ces hauts taux de comptages alors qu'une dérive de cette quantification est observée dès  $6.10^5$  cps avec le traitement conventionnel. Les performances de la chaîne sont également illustrées via les essais menés sur la boucle ISABELLE-1 lors de cette thèse. Ces essais seront détaillés dans le chapitre 6. Le Tableau 5-1 résume l'apport du concept ADONIS sur la spectrométrie conventionnelle.

	Spectrométrie conventionnelle	Spectrométrie ADONIS
Filtre	Linéaire RIF	Non linéaire RII
<i>A priori</i> sur le signal	Amplitudes variables Formes fixes Non empilées	Amplitudes variables Formes variables Empilée ou non
Réglage du filtre	Constante de temps (fonction du temps de comptage) Temps de plateaux	Sans (par construction)
Unités correctrices	<i>Baseline restorer</i> <i>PileUp Rejector</i> <i>Life-time Corrector</i>	Sans (par construction)
Résolution	Fixe ( <i>a priori</i> )	Fonction du taux de comptage
Fiabilité métrologique	Non garantie à hauts taux de comptage	Garantie quel que soit le taux de comptage
Suivi d'activité	Constant	Variable
Limite en taux de comptage	$6.10^5$ cps	5 Mcps

**Tableau 5-1 : Apports du système ADONIS pour la spectrométrie gamma [98]**

La chaîne de spectrométrie gamma ADONIS représente donc une piste solide pour une spectrométrie gamma sur le sodium primaire d'ASTRID. En effet, l'utilisation du lisseur de Kalman bimodal permet de s'affranchir d'a priori sur la forme des signaux et de leur mise en forme permettant ainsi une adaptation aux hauts taux de comptage et aux variations d'activités. Ces deux caractéristiques sont essentielles à la spectrométrie gamma envisagée en raison des taux de comptage importants attendus liés à l'activité des produits d'activation et aux variations potentiellement brutales que peuvent apporter les relâchements de produits de fission, notamment les bouffées gazeuses.

## 5.4 Le traitement conventionnel des spectres

Les algorithmes implémentés dans les logiciels de spectrométrie gamma permettent d'identifier et de quantifier les pics d'absorption totale représentatifs des radionucléides mis en jeu. Ces algorithmes reposent généralement sur la méthode IFD (*Iterative fitting deconvolution*) aussi connue sous le nom de méthode Mariscotti ou encore la méthode de la dérivée seconde. La méthode est détaillée dans [99] et nous rappelons son principe ici.

La première étape de cette méthode consiste à définir la dérivée seconde  $S_1$  du spectre étudié via l'équation (5.19).

$$S_{i,1} = N_{i+1} - 2N_i + N_{i-1} \quad (5.19)$$

Où  $N$  est le spectre gamma exprimé en coups et  $i$  l'indice du canal. Cette dérivée seconde est ensuite lissée à  $z$  reprises selon l'équation (5.20).

$$\forall j \in [2; z], \quad S_{i,j} = \sum_{h=i-m}^{i+m} S_{h,j-1} \quad (5.20)$$

Avec  $m$  et  $z$  les paramètres influant sur l'intensité du lissage. Ces derniers sont généralement de  $0,6 F_i$  et  $5$  respectivement avec  $F_i$  la FWHM correspondant à un pic dont le centroïde est évalué au canal  $i$ . Le calcul de la variance associée  $V_{i,j}$  permet alors la détection de minima locaux significatifs aux énergies  $E_\alpha$  via un test d'hypothèse (équation (5.21)).

$$E_\alpha = \underset{i}{\text{arg}} \{ |S_{i,z}| > KV_{i,z} \} \quad (5.21)$$

Où  $K$  est un paramètre réglé par défaut à deux. Connaissant la localisation des pics  $E_\alpha$  et l'étalonnage en énergie  $F_i$ , les fonctions  $g$  sont ajustées sur le spectre  $N$  tel que :

$$\forall \alpha \ \& \ \forall i \in [E_\alpha - 5F_\alpha, E_\alpha + 5F_\alpha],$$

$$g_{i,\alpha,p} = p_{1,\alpha} G_{i,E_\alpha,F_\alpha} + p_{2,\alpha} i^2 + p_{3,\alpha} i + p_{4,\alpha} \quad (5.22)$$

Où  $G$  est une fonction gaussienne de moyenne  $E_\alpha$  et d'écart-type  $\frac{F_\alpha}{2,35}$ . Les paramètres  $p_\alpha = \{p_{1,\alpha}; p_{2,\alpha}; p_{3,\alpha}; p_{4,\alpha}\}$  sont estimés via une régression non linéaire par moindres carrés minimisant le résidu  $R$  entre  $g$  et  $N$  :

$$R = \sum_{i=\alpha-5F_\alpha}^{\alpha+5F_\alpha} \frac{[g_{i,\alpha,k} - N_i]^2}{N_i} \quad \& \quad p_\alpha = \arg \min_k \{R\} \quad (5.23)$$

Un paramètre  $Q$  de convergence correspondant à un seuil pour le résidu est introduit dans la régression non linéaire. Si la condition  $p_\alpha < Q$  n'est pas remplie, le pic  $\alpha$  est rejeté.

La présence de pics d'absorption totale entrelacés est détectée par comparaison entre la distance séparant les deux centroïdes  $\Delta E_\alpha$  et la distance  $\gamma F_\alpha$ . La fonction  $g$  devient alors :

$$\begin{aligned} \forall \alpha, \Delta E_\alpha < \gamma F_\alpha, \quad g_{i,\alpha,p} \\ = p_{1,\alpha} G_{i,E_\alpha,F_\alpha} + p_{2,\alpha} G_{i,E_\alpha,F_\alpha} + p_{3,\alpha} i^2 + p_{4,\alpha} i \\ + p_{5,\alpha} \end{aligned} \quad (5.24)$$

L'estimation de  $E_\alpha$  et des paramètres  $p_\alpha$  permet ainsi la localisation et la quantification des pics d'absorption totale dans le spectre.

## 5.5 Le code SINBAD

### 5.5.1 Le concept de SINBAD

SINBAD est un code développé au sein du Laboratoire de Modélisation et Simulation des Systèmes (LM2S) du CEA Saclay dont le but est de déconvoluer les spectres gamma, c'est à dire séparer les pics d'absorption totale, somme et d'échappement du fond Compton sous-jacent et les caractériser par leur énergie, leur FWHM, leur aire nette ainsi que les incertitudes associées. SINBAD utilise une approche de type bayésienne non paramétrique par échantillonnage MCMC (*Markov Chain Monte Carlo*) qui permet d'estimer la densité de probabilité  $S$  sous-jacente aux événements représentés sous forme de spectre grâce à un certain nombre d'*a priori* découlant de la physique du problème. Le modèle pour  $S$  est décrit dans l'équation (5.25).

$$S = aP + (1 - a)B \quad (5.25)$$

Avec  $a$  compris entre 0 et 1. L'approche bayésienne nous fait considérer ici  $a$ ,  $P$  et  $B$  comme des variables aléatoires.

Afin de modéliser les pics, l'*a priori* choisi pour  $P$  est un mélange de processus de Dirichlet [100] qui peut être assimilé à une somme potentiellement infinie de pics répartis sur l'ensemble

du spectre. Le nombre de pics n'est donc pas un paramètre fixé. L'a priori choisi pour le fond B est un mélange d'arbre de Pólya [101] dont le profil doux est contraint afin de permettre la séparation des pics. L'a priori sur a dénotant la proportion entre le fond et les pics est une loi béta. Le choix fait pour le noyau K utilisé pour la construction des pics P est un noyau de type normal afin de rendre compte de la forme gaussienne des pics dans le spectre HPGe (voir équation (5.26)). Le modèle choisi pour la résolution des pics  $\sigma$  est de type linéaire avec l'énergie.

$$K(e|\mu, \sigma) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left(-\frac{(e - \mu)^2}{2\sigma^2}\right) \quad (5.26)$$

La loi S est une loi jointe et ne peut être déterminée directement. Un algorithme MCMC utilisant un échantillonnage de Gibbs [102] est implémenté via l'introduction de variables supplémentaires  $Y_{ij}$  de manière à converger vers les lois de probabilités sous-jacentes à a, P, B. A chaque itération, le triplet  $(a_n, P_n, B_n)$  proposé permet de définir le paramètre d'étiquetage  $Y_i = (Y_{i1}, Y_{i2}, \dots, Y_{i(m+1)})$  décrit dans l'équation (5.27).

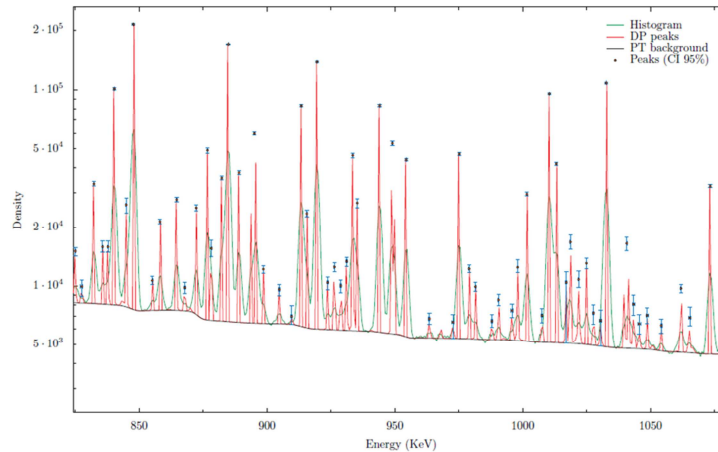
$$Y_i \sim \varphi(N_i, (p_1, \dots, p_{j+1})) \quad (5.27)$$

Avec i l'indice du canal dans le spectre et j le nombre de pics proposés. Les variables  $Y_i$  sont déterminées par tirage dans une loi multinomiale de paramètres  $N_i$ , le nombre d'évènements enregistrés dans le canal i, et  $p_j$  la probabilité associée au pic j. L'indice j + 1 est dédié au fond. Ainsi la variable  $Y_{ij}$  permet d'étiqueter l'appartenance d'un évènement du canal i à l'un des pics ou au fond.

Grâce à la définition de ces coefficients  $Y_{ij}$  permettant le calcul du vecteur  $(p_1, \dots, p_{j+1})$  à l'itération suivante, il est alors possible de construire les lois de probabilités conditionnelles permettant de déterminer une séquence  $(a_0, P_0, B_0, a_1, P_1, B_1, \dots, a_n, P_n, B_n)$  telles que :

$$\begin{aligned} a_n &\sim S(a|P_{n-1}, B_{n-1}) \\ P_n &\sim S(P|a_{n-1}, B_{n-1}) \\ B_n &\sim S(B|a_{n-1}, P_{n-1}) \end{aligned} \quad (5.28)$$

Le triplet  $(a_n, P_n, B_n)$  peut alors être considéré comme une réalisation de  $(a, P, B)$  pour un nombre d'itérations n suffisamment grand. Une fois la convergence atteinte, l'ensemble des tirages permet de définir un estimateur de la loi S recherchée à partir duquel est déterminé l'ensemble des caractéristiques des pics. La Figure 5-4 illustre la déconvolution d'un spectre gamma dense de produits de fission par SINBAD.



**Figure 5-4 : Illustration de la déconvolution de SINBAD sur un spectre gamma dense de produits de photofission**

Les algorithmes conventionnels reposant essentiellement sur des méthodes d'optimisation demandent souvent un paramétrage complexe de la part de l'utilisateur, sans quoi des biais importants peuvent apparaître. L'approche bayésienne non paramétrique de SINBAD possède l'avantage de minimiser l'intervention de l'utilisateur et permet d'obtenir un intervalle de confiance pour la grandeur estimée. De plus, SINBAD s'avère être un outil puissant pour discriminer deux pics présentant des chevauchements ou un rapport d'intensités importants. Les performances de SINBAD et de la méthode conventionnelle implémentée dans le logiciel de spectrométrie gamma GENIE 2000 de la société CANBERRA ont fait l'objet d'une étude poussée lors de cette thèse dont les résultats sont présentés dans la section suivante.

### 5.5.2 L'étude comparative SINBAD/méthode conventionnelle

L'objectif est ici d'évaluer les performances de SINBAD concernant le traitement des spectres denses incluant de fortes superpositions entre pics comme ceux pouvant être rencontrés dans une application de suivi de rupture de gaine. C'est pourquoi il a été entrepris au cours de cette thèse de réaliser une étude comparative entre SINBAD et la méthode conventionnelle relatif aux performances de déconvolution des deux méthodes respectives. Afin d'illustrer la méthode conventionnelle, le logiciel de spectrométrie gamma de la société Canberra GENIE 2000 est utilisé. Deux aspects sont considérés dans cette étude :

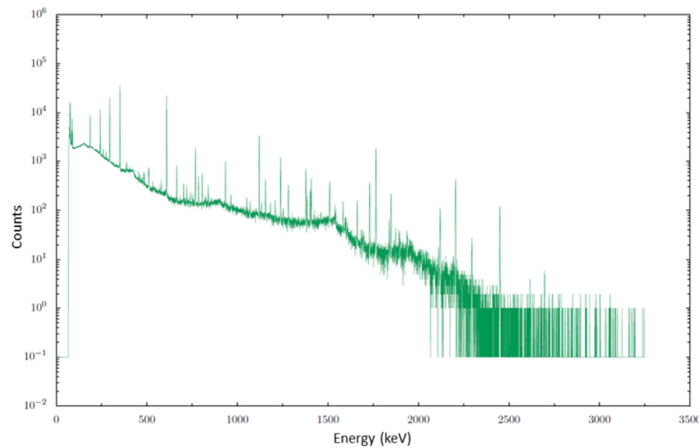
- La capacité à détecter les pics, cela inclut le nombre de vrais pics (singulets) détectés, de singulets non détectés, de faux singulets détectés, de doublets détectés et de faux doublets détectés
- L'estimation des énergies et des aires nettes associées à la détection de doublets en fonction de la distance en énergie séparant les pics du doublet à déconvoluer et du ratio entre leur intensité respectives.

Trois tests sont ici considérés:

- Le test “1995 IAEA test spectra”
- Le test du  $^{137}\text{Cs}$
- Le test des deux sources  $^{57}\text{Co}$  -  $^{152}\text{Eu}$

### 5.5.2.1 Le test “1995 IAEA test spectra” [103]

Ce test est un outil créé par l’AIEA dédié au benchmark de logiciels de spectrométrie gamma. Ce dernier est composé de différents spectres de  $^{226}\text{Ra}$  et de ses descendants. La complexité des spectres considérés est illustrée en Figure 5-5.



**Figure 5-5 : Spectre de référence de  $^{226}\text{Ra}$  avec ses descendants issu du test AIEA**

Quatre spectres de temps d’acquisition de 2000 s, 667 s, 200 s et 20 s sont décalés de trois canaux sur la droite (correspondant à un shift en énergie de 1,2 keV au vu de l’étalonnage en énergie) puis sommés à un autre spectre de 2000 s. Ces spectres modifiés sont respectivement nommés « ADD1N1 », « ADD3N1 », « ADD10N1 » et « ADD100N1 ». De cette manière, une superposition des pics est artificiellement créée incluant des rapports d’intensités respectivement de 1, 3, 10 et 100 pour les quatre spectres considérés servant alors de support pour le test des deux méthodes.

Le premier test consiste à quantifier le nombre de détection et de non détection des pics ainsi que le nombre de faux pics détectés dans le spectre ADD1N1 dans lequel chaque pic se superpose à un pic de même intensité décalé de 1,2 keV. Le Tableau 5-2 récapitule les résultats de la déconvolution du spectre. Deux valeurs de  $Q$  sont étudiées, une faible valeur aura tendance à augmenter la déconvolution des pics avec un risque de fausse détection plus important.

	Méthode IFD Q=4 (défaut)	Méthode IFD Q=2 (valeur minimale)	SINBAD
Pics dans le spectre de référence	73	73	76 (+3)
Vrais doublets	6	15	44 (+29)
Doublets détectés comme singulets	51	43	25 (-18)
Pics non détectés	15	15	7 (-8)
Faux pics	6	7	4 (-2)

**Tableau 5-2 : Résultats de la déconvolution du spectre ADD1N1**

Ces résultats indiquent une meilleure déconvolution du spectre avec SINBAD avec environ trois fois plus de vrais doublets identifiés et deux fois moins de doublets considérés comme singulets et de pics non détectés qu’avec la méthode IFD tout en conservant un nombre de faux pics détectés inférieur.

Le second test consiste à évaluer via les deux méthodes le biais sur l’énergie estimée  $\hat{E}$  et sur l’aire estimée  $\hat{A}$  du pic à 609,26 keV, ce dernier étant parasité par le pic issu du décalage de 1,2 keV (correspondant ici à 1 FWHM pour le pic étudié) vers les hautes énergies pour différents ratios d’intensités entre les pics. Les références considérées sont donc  $E_{ref} = 609,26$  keV et  $A_{ref} = 73073 \pm 438$  coups. Cette évaluation est réalisée sur les différents spectres ADD1N1, ADD3N1, ADD10N1 et ADD100N1. Le Tableau 5-3 récapitule les différents biais observés dans l’estimation de la position du pic.

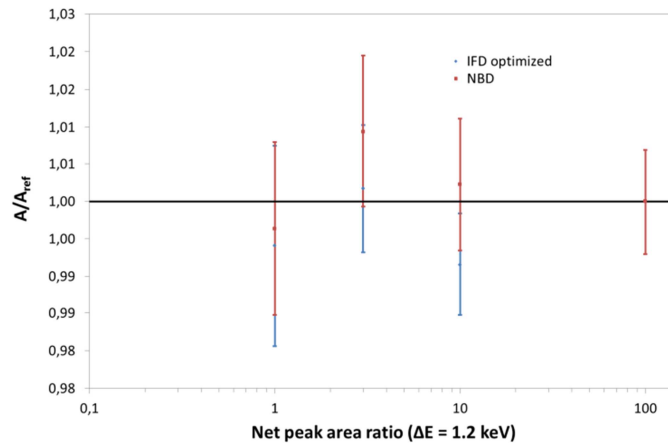
Ratio des aires nettes	$\hat{E}_{IFD} - E_{ref}$ (keV)	$\hat{E}_{SINBAD} - E_{ref}$ (keV)
1	0,16	0,25
3	0,17	0,26
10	0,17	0,26
100	-	0,25

**Tableau 5-3 : Biais dans l’estimation de l’énergie du pic à 609,26 keV**

Les biais moyens observés sont de l’ordre de 170 eV et de 260 eV respectivement pour la méthode IFD et pour SINBAD sans augmentation significative avec le ratio des aires nettes. Ces biais peuvent s’expliquer par le faible *binning* en énergie dans les spectres issus de ce test AIEA de 400 eV par canal. De plus il est à noter que si la méthode IFD présente un biais légèrement plus faible, le pic n’est pas détecté pour un ratio des aires nettes de 100 avec cette dernière, contrairement à SINBAD.

Concernant l’estimation des aires nettes, la Figure 5-6 présente les biais sur l’estimation des aires nettes du pic à 609,26 keV et les incertitudes associées. Pour les ratios d’aires nettes

compris entre 1 et 10, les deux méthodes offrent une estimation non biaisée (biais inférieurs à 2%). Alors que la méthode IFD ne discrimine pas le doublet pour un ratio de 100, SINBAD estime correctement l'aire nette du pic.



**Figure 5-6 : Biais sur les aires nettes estimées du pic à 609,26 keV pour les différents ratios étudiés (erreurs à  $2\sigma$ )**

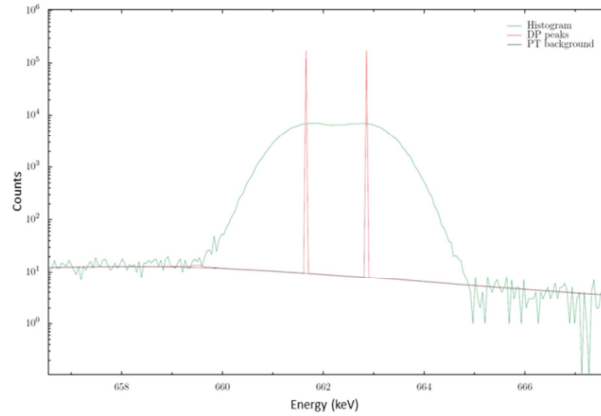
#### 5.5.2.2 Le test du $^{137}\text{Cs}$

Dans le but de prendre en compte dans cette étude les variations de distance en énergie entre les pics à discriminer, des spectres de  $^{137}\text{Cs}$  ont été acquis avec un détecteur HPGe Canberra GL2015 type N couplé à un analyseur Canberra DSA-1000. Conservant la même philosophie que le test précédent, des spectres de différents temps d'acquisition sont décalés puis sommés à un spectre de référence de 1000 secondes. L'aire nette de référence du pic à 661,6 keV est de  $364484 \pm 607$  coups. Les différentes configurations étudiées sont :

- Une distance en énergie variant de 240 eV à 1,2 keV (correspondant respectivement à 0,2 et 1 FWHM pour le pic étudié) pour un ratio des aires nettes égal à 1
- Un ratio des aires nettes variant de 1 à 100 pour une distance en énergie fixée à 720 eV

La Figure 5-7 illustre la superposition des deux pics de  $^{137}\text{Cs}$  pour une distance en énergie de 1,2 keV et un ratio des aires nettes de 1 avec en vert le spectre expérimental et en rouge le résultat de la déconvolution SINBAD.





**Figure 5-7 : Superposition des deux pics de  $^{137}\text{Cs}$  pour une distance en énergie de 1,2 keV et un ratio des aires nettes de 1 (illustration SINBAD)**

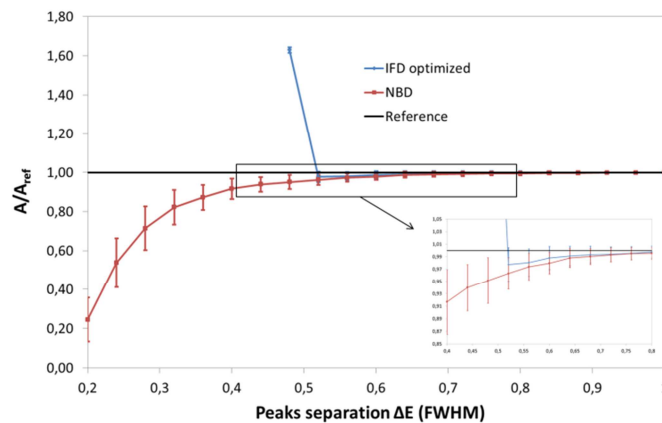
Le Tableau 5-4 illustre le biais  $\hat{E} - E$  du pic non décalé à 661,6 keV pour les différentes distances entre les deux pics. La méthode IFD ne parvient pas à discriminer les deux pics pour une séparation des deux pics inférieure à 0,48 FWHM (malgré un seuil pour le résidu à sa valeur minimale avec  $Q=2$ ). SINBAD parvient à distinguer les deux pics sans biais significatifs jusqu'à une séparation de 0,24 FWHM. Notons que si la méthode IFD est utilisée avec une valeur de  $Q$  égale à 4 comme proposé par défaut dans GENIE 2000, la limite de détection du doublet est de 1,04 FWHM.

Séparation des pics (FWHM)	$\hat{E}_{IFD} - E$ (keV)	$\hat{E}_{SINBAD} - E$ (keV)
0,20	-	-0,18
0,24	-	0,01
0,28	-	0,04
0,32	-	-0,04
0,36	-	-0,03
0,40	-	-0,02
0,44	-	-0,02
0,48	0,17	-0,02
0,52	-0,01	-0,01
0,56	-0,01	-0,01
0,60	-0,01	-0,01
0,64	-0,01	-0,01
0,68	-0,01	-0,01
0,72	-0,01	-0,01

0,76	-0,01	-0,01
0,80	-0,01	-0,01
0,84	-0,01	-0,01
0,88	-0,01	0,00
0,92	-0,01	0,00
0,96	-0,01	0,00
1,00	-0,01	0,00

**Tableau 5-4 : Biais sur l'estimation de l'énergie du pic non décalé à 661,6 keV**

La Figure 5-8 illustre le biais sur l'estimation de l'aire nette  $\hat{A}/A_{ref}$  pour le pic à 661,6 keV pour les différentes séparations en énergie des deux pics. Les résultats de la méthode IFD sont obtenus pour les paramètres optimisés de la méthode. Des biais significatifs apparaissent en dessous de 0,6 FWHM pour SINBAD et de 0,52 FWHM pour la méthode IFD. Si la méthode IFD permet d'obtenir une meilleure estimation de l'aire nette pour une séparation des pics supérieure à 0,52 FWHM, ce résultat est obtenu au prix d'un ajustement fin des paramètres en ayant connaissance de l'aire nette réelle, ce qui n'est pas le cas dans la pratique. L'erreur présentée par SINBAD reste inférieure à 5% pour des séparations supérieures à 0,5 FWHM. La détection du doublet reste possible pour les très faibles séparations même si le biais sur l'aire nette devient alors très significatif (80% pour une séparation de 0,2 FWHM).



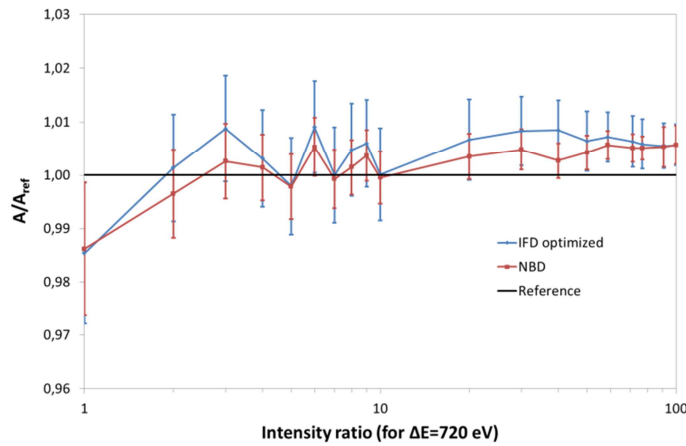
**Figure 5-8 : Biais sur l'aire nette relative pour une séparation des pics allant de 0,2 à 1 FWHM (erreurs à  $2\sigma$ )**

Considérons maintenant une séparation minimale de 0,6 FWHM pour laquelle les résultats apparaissent non biaisés avec les deux méthodes. Le Tableau 5-5 récapitule les biais obtenus sur l'énergie estimée du pic à 661,6 keV pour une séparation des pics de 720 eV (0,6 FWHM) et pour des ratios d'aires nettes compris entre 1 et 100. Dans tous les cas, l'estimation de la position du pic apparaît non biaisée.

Ratio des aires nettes	$\hat{E}_{IFD} - E$ (keV)	$\hat{E}_{NBD} - E$ (keV)
1	0,00	0,00
2	-0,01	0,00
3	-0,01	0,00
4	-0,01	0,00
5	-0,01	0,00
6	-0,01	0,00
7	-0,01	0,00
8	-0,01	0,00
9	-0,01	0,00
10	-0,01	0,00
20	-0,01	0,00
30	-0,01	0,00
40	-0,01	-0,01
50	-0,01	0,00
59	-0,01	0,00
71	-0,01	0,00
77	-0,01	0,00
91	-0,01	0,00
100	-0,01	0,00

**Tableau 5-5 : Biais sur l'énergie estimée du pic à 661,6 keV pour une séparation des pics de 720 eV (0,6 FWHM) et pour différents ratios des aires nettes**

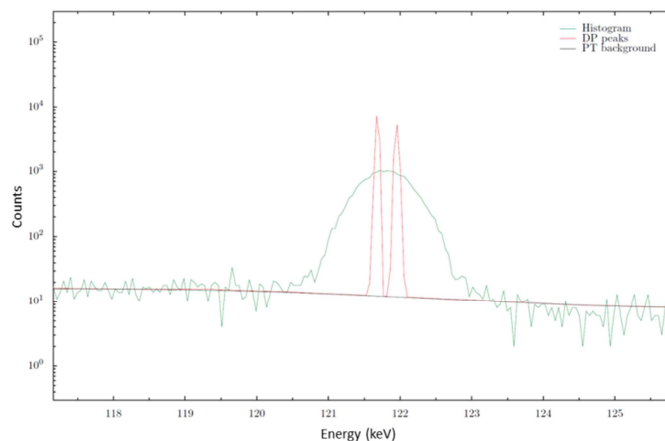
La Figure 5-9 illustre les biais obtenus sur les aires nettes pour une séparation des pics de 720 eV (0,6 FWHM) et pour des ratios entre aires nettes allant de 1 à 100. Les deux méthodes offrent une estimation de l'aire nette non biaisée pour des ratios compris entre 2 et 10. Un biais apparaît pour des ratios supérieurs à 10 mais reste inférieur à 1% dans le cas de la méthode IFD et inférieur à 0,5% dans le cas de SINBAD. Au vu de ces faibles biais, les mesures peuvent donc être considérées comme pertinentes jusqu'à un ratio de 100 à la séparation en énergie considérée de 0,6 FWHM. Toutefois, un biais surprenant de 1,3% est observé pour le ratio égal à 1, ce dernier pourrait s'expliquer par une très grande symétrie entre les deux pics dans ce cas particulier.



**Figure 5-9 : Biais sur les aires nettes relatives du pic à 661,6 keV pour une séparation des pics de 0,6 FWHM pour différents ratios (erreurs à  $2\sigma$ )**

### 5.5.2.3 Le test des deux sources $^{57}\text{Co}$ - $^{152}\text{Eu}$

Les radioéléments  $^{57}\text{Co}$  et  $^{152}\text{Eu}$  sont des radioéléments présentant certaines émissions gamma très proches, respectivement 122,06 keV et 121,78 keV. Un spectre gamma est dans un premier temps enregistré en présence de la source de  $^{57}\text{Co}$  uniquement, puis en présence de la source d' $^{152}\text{Eu}$  positionnée à différentes distances du détecteur HPGe. Le dispositif de mesure est le même que celui décrit précédemment pour le test avec la source de  $^{137}\text{Cs}$ . Les biais sur la position du pic de  $^{57}\text{Co}$  et sur son aire nette sont ensuite mesurés en fonction des différents ratios entre les aires nettes résultant de la perturbation induite par la source d' $^{152}\text{Eu}$ . La Figure 5-10 illustre la convolution des deux pics.



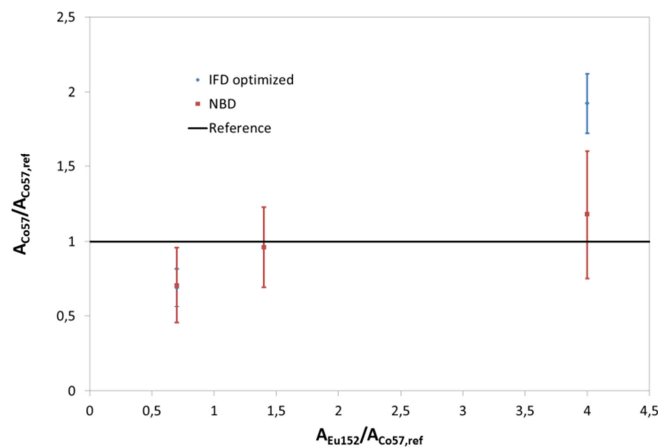
**Figure 5-10 : Convolution des pics de  $^{57}\text{Co}$  et  $^{152}\text{Eu}$  (SINBAD)**

Le Tableau 5-6 et la Figure 5-11 récapitulent les différents biais obtenus sur l'estimation de l'énergie et de l'aire nette du pic à 122,06 keV du  $^{57}\text{Co}$  en fonction de la perturbation  $^{152}\text{Eu}$ . SINBAD offre de meilleurs résultats que la méthode IFD, tant sur le plan qualitatif que quantitatif. Dans ce cas de forte convolution réelle (et non simulée comme dans les deux tests précédents), la méthode IFD ne parvient pas à détecter le doublet pour un ratio de 1,4 et

l'estimation de l'aire nette est fortement biaisée pour le ratio de 4 alors que SINBAD parvient à l'estimer correctement avec une incertitude cependant importante.

$A_{Eu152\_ref}/A_{Co57\_ref}$	$\hat{E}_{IFD} - E$ (keV)	$\hat{E}_{NBD} - E$ (keV)
4	0,00	-0,02
1,4	-	-0,04
0,7	-0,12	-0,08

**Tableau 5-6 : Biais sur l'estimation de l'énergie du pic de  $^{57}Co$**



**Figure 5-11 : Biais sur les aires nettes du pic de  $^{57}Co$  (erreurs à  $2\sigma$ )**

#### 5.5.2.4 Conclusion

Cette étude nous indique que lorsque la séparation des deux pics composant le doublet est suffisamment importante, les deux méthodes présentent des performances similaires. En revanche, lorsque cette séparation devient plus faible ( $< 0,5$  FWHM), SINBAD reste capable de détecter la présence du doublet en estimant correctement la position du pic même si des biais importants apparaissent sur l'estimation de l'aire nette. La méthode IFD n'est pas en mesure de discriminer les deux pics. SINBAD permet également la déconvolution d'un plus grand nombre de pics dans le traitement du spectre entier en préservant un taux de fausse détection inférieur à la méthode IFD. De plus, si SINBAD montre clairement sa plus-value dans les cas de forte convolution, ces résultats sont obtenus sans réglage particulier de la part de l'utilisateur en raison de l'aspect bayésien non paramétrique de la méthode. Les résultats de la méthode IFD présentés dans cette étude ont fait l'objet d'un paramétrage fin cherchant à approcher les références connues par avance. L'aspect non paramétrique de SINBAD facilite donc grandement son utilisation pour des personnes non expertes contrairement à la méthode IFD où un paramétrage fin est souvent nécessaire pour traiter les fortes convolutions présentées dans cette étude.

## 5.6 Le suivi temporel des aires nettes

Après avoir explicité l'identification et la quantification des pics d'absorption totale dans un spectre gamma représentatif des activités perçues au niveau du détecteur sur une période d'intégration généralement longue (au moins plusieurs secondes), nous nous intéressons dans cette section au suivi temporel des évènements via l'évolution des aires nettes des pics d'absorption totale au cours du temps. Ce suivi s'avère en effet nécessaire dans le cadre d'une application pour le suivi de ruptures de gaine en raison de la soudaineté de ce type d'évènements et de la nécessité d'apporter un diagnostic rapide sur l'état de ces dernières.

### 5.6.1 Les algorithmes développés

Dans le but d'opérer le suivi temporel des aires nettes sur les données issues des essais de la spectrométrie gamma ADONIS pour le suivi de rupture de gaine présentée dans le chapitre 6, des algorithmes dédiés implémentés sous Matlab ont été développés afin d'extraire l'information utile des fichiers de sortie d'ADONIS. Les traitements implémentés afin d'extraire le taux de comptage total ainsi que le suivi temporel des aires nettes sont présentés ci-dessous.

#### 5.6.1.1 Suivi du taux de comptage total

Chaque évènement enregistré par ADONIS est représenté sous la forme d'un triplet  $(c_k, idle_k, busy_k)$  correspondant respectivement à l'amplitude de l'évènement, au temps actif et au temps mort de la chaîne associés à chaque évènement. La date  $t_k$  d'occurrence de l'évènement  $k$  est définie de la manière suivante :

$$t_k = F^{-1} \sum_k (idle_k + busy_k) \quad (5.29)$$

Avec  $F$  la fréquence d'échantillonnage d'ADONIS de 10 MHz. Le taux de comptage total moyen  $T_i$  sur l'intervalle de temps  $[i\Delta t; (i-1)\Delta t]$  est alors défini de la manière suivante :

$$n_i = \underset{k}{argsup}(t_k < i\Delta t) - \underset{k}{argsup}(t_k < (i-1)\Delta t) \quad (5.30)$$

$$T_i = -F \ln\left(1 - \frac{n_i}{\sum_{k/(i-1)\Delta t < t_k < i\Delta t} idle_k}\right) \quad (5.31)$$

Avec  $n_i$  le nombre d'évènements enregistrés dans l'intervalle de temps  $[i\Delta t; (i-1)\Delta t]$ . La correction en logarithme permet de compenser l'apparition de biais à hauts taux de comptage ( $> 10^6$  cps) liés à l'échantillonnage du signal. Ce traitement permet ainsi à l'utilisateur de construire le suivi du taux de comptage total  $T_i$  avec le pas temporel  $\Delta t$  désiré.

### 5.6.1.2 Construction des spectres

Les spectres  $S_i$  sont construits par intégration des histogrammes en énergie sur la plage temporelle désirée :

$$S_i = \text{hist}(Kc_k) \text{ tel que } (i - 1)\Delta t < t_k < i\Delta t \quad (5.32)$$

Avec  $K$  le coefficient d'étalonnage en énergie. Il est ainsi possible de reconstruire un spectre en énergie à partir d'un temps  $t_0$  et durant une période  $\Delta t$  renseignée par l'utilisateur. La construction du vecteur  $(S_1, S_2, \dots, S_n)$  permet d'accéder au mapping des intensités (i.e. événements enregistrés) déposées en fonction du temps et de l'énergie.

### 5.6.1.3 Suivi temporel des aires nettes

Le suivi temporel de l'aire nette d'un pic d'absorption totale est assuré via une succession d'ajustement des données sur les spectres cumulés du vecteur  $(S_1, S_1 + S_2, \dots, \sum S_n)$  dans la région d'intérêt sur laquelle le pic d'intérêt est défini. Afin d'augmenter la précision et la sensibilité de l'ajustement des données notamment sur les faibles changements d'activités, un lissage temporel, nommé CST\*, utilisant un filtre de lissage non-linéaire basé sur un test d'hypothèse a été implémenté.

#### 5.6.1.3.1 Le filtre de lissage CST\*

Le comptage nucléaire de chaque canal  $i$  peut être considéré comme une série de variables aléatoires  $N^t$  dépendante du temps et prenant ses valeurs dans une loi de Poisson  $\mathcal{P}$  tel que :

$$N^t \sim \mathcal{P}(\lambda^t) \quad (5.33)$$

Où  $\lambda^t$  est l'espérance de la valeur de comptage que le filtre doit estimer de manière la plus juste et la plus précise possible. Lorsque  $\lambda^t$  est constant, nous savons que l'estimée maximisant la vraisemblance est obtenue par la moyenne des données mesurées  $N^t$  [104]. Toutefois, lorsque  $\lambda^t$  est variable, comme dans la problématique du suivi des ruptures de gaines, il n'est plus possible de garantir une mesure non-biaisée lors des transitoires d'activité. Afin de limiter ces écarts de justesse, les filtres mis en œuvre sont paramétrés par une constante de temps limitant la bande passante du filtre en regard d'un compromis entre le temps de réponse (i.e. justesse) et la précision de la mesure. Ainsi, les filtres les plus communément utilisés sont la moyenne glissante simple SMA « *Simple Moving Average* » de réponse impulsionnelle créneaux [105]–[107], et la moyenne glissante exponentielle EMA « *Exponential Moving Average* » de réponse impulsionnelle exponentielle [108]–[110], paramétrées respectivement par les constantes de temps  $l$  et  $\alpha$  telles que présentées ci-dessous dans leur forme récursive :

$$\hat{\lambda}_{SMA}^t = \hat{\lambda}_{SMA}^{t-1} + \frac{1}{l}(N^t - N^{t-l}) \quad (5.34)$$

$$\hat{\lambda}_{EMA}^t = \alpha N^t + (1 - \alpha)\hat{\lambda}_{EMA}^{t-1} \quad (5.35)$$

Nous constatons qu'un a priori sur les conditions expérimentales doit être fait dans le choix des valeurs associées aux paramètres  $l$  et  $\alpha$ . Dans le cadre du suivi des signaux de rupture de gaines, nous ne pouvons pas prévoir la forme des transitoires caractéristiques de ces ruptures dont la variété a été soulignée au chapitre 3. Dans l'intention de dépasser la présente limitation de ces filtres linéaires à réponse impulsionnelle finie, nous nous sommes orientés vers l'utilisation d'un filtrage non-linéaire permettant d'estimer le signal avec une maximisation de la vraisemblance locale [111], [112]. Un filtre non-linéaire est développé par le CEA LIST. Ce dernier est mise en œuvre dans le cadre de la présente étude [113], [114].

Tout d'abord, un filtre SMA est construit avec une plage d'intégration temporelle variable ( $l \rightarrow l^t$ ) s'adaptant en continu aux conditions expérimentales. A chaque nouvelle valeur de comptage, la variable d'intégration temporelle  $l^t$  est estimée par un algorithme basé sur un test d'hypothèse permettant de détecter des changements d'activités. L'algorithme nécessite de mémoriser un historique des valeurs de comptage  $N^t$  dans un vecteur de taille  $M$ . A chaque pas d'échantillonnage  $\Delta t$ , les valeurs de comptage sont déplacées suivant une file d'attente FIFO (« *first in, first out* ») telle que :

$$\forall i \in [1; M], N_i^t = N_{i-1}^{t-\Delta t} \quad (5.36)$$

Puis la nouvelle valeur de comptage est enregistrée dans le premier emplacement  $N_1^t$ . Différentes estimations SMA sont calculées suivant l'équation (5.37) pour fournir un panel de comptage allant d'une estimation juste (temps de réponse rapide) mais peu précise ( $i = 1$ ) à une estimation peu juste mais précise ( $i = M$ ).

$$\forall i \in [1; l^{t-1}], \hat{\lambda}_i^t = \frac{1}{i} \sum_{j=1}^i N_j^t \quad (5.37)$$

Dans cette équation  $l^{t-1}$  est le paramètre d'intégration estimé au pas précédent. Cette valeur est réévaluée à l'instant  $t$  pour fournir le meilleur compromis entre justesse et précision sachant la nouvelle valeur de comptage  $N_1^t$ . La détection de changement d'activité au sein de  $\lambda^t$  est assurée par un test d'hypothèse avec  $H_0$  l'hypothèse nulle ou de non-détection et  $H_1$  l'hypothèse de détection. L'écart type associé à chaque valeur de  $\lambda^t$  est estimé suivant l'hypothèse de loi Poisson formulée dans l'équation 1 en considérant la propriété d'égalité entre l'estimée de la variance et l'estimé de l'espérance.



$$\forall i \in [1; l^{t-1}], \quad \sigma(\hat{\lambda}_i^t) = \sqrt{\frac{\hat{\lambda}_i^t}{i}} \quad (5.38)$$

Ensuite la différence entre chaque valeur estimée de comptage successive est comparée à son écart-type dans un test de significativité appelé CST (« *Centered Significance Test* ») où  $t_\alpha$  est le facteur d'élargissement du test qui est fonction du risque alpha de détection à tort. Suivant ce test, le nombre d'occurrence où l'hypothèse  $H_1$  a été validée et l'hypothèse  $H_0$  infirmée est enregistré dans la valeur L telle que :

$$\forall i \in [1; l^{t-1}], \quad L = \dim \left\{ \arg \left[ \left| \hat{\lambda}_i^t - \hat{\lambda}_{i^{t-1}}^t \right| > t_\alpha \sqrt{\sigma^2(\hat{\lambda}_i^t) + \sigma^2(\hat{\lambda}_{i^{t-1}}^t)} \right] \right\} \quad (5.39)$$

La valeur L est une figure de mérite caractérisant la variabilité au sein des valeurs de comptage  $N^t$ . Elle est donc mise en œuvre dans l'évaluation de la plage d'intégration  $l^t \in [2; M]$  appropriée au sens de l'optimisation du compromis entre justesse et précision telle que :

$$l^t = l^{t-1} - L + 1 \quad (5.40)$$

La valeur de comptage  $\hat{\lambda}_{CST}^t$  retenue à l'instant t devient alors :

$$\hat{\lambda}_{CST}^t = \hat{\lambda}_i^t \quad (5.41)$$

En l'absence de détection,  $H_0$  est confirmée pour toutes les valeurs comprises entre 1 et  $l^{t-1}$  conformément au test d'hypothèse CST, la valeur de L est nulle et la plage d'intégration  $l^t$  est étendue afin d'affiner la précision de la mesure. Autrement, en la présence de détection où  $H_1$  est confirmé pour une ou plusieurs valeurs comprises entre 1 et  $l^{t-1}$ , la valeur de L est diminuée et la plage d'intégration  $l^t$  est réduite afin de rendre la réponse du système la plus rapide possible et maintenir la justesse de l'estimation pendant le transitoire d'activité ainsi détecté.

L'estimation  $\hat{\lambda}_{CST}^t$  est ensuite doublée d'un lissage exponentiel pour accroître le lissage de la mesure. Le lissage exponentielle double ou de Brown BES « *Brown's double Exponential Smoothing* », est utilisé en économie pour la prédiction des valeurs et l'anticipation de tendance [115], [116]. Ce filtre est particulièrement adapté au lissage des estimés  $\hat{\lambda}_{CST}^t$  pour lesquelles aucune hypothèse de loi statistique ne peut être avancée. La valeur de la tendance est estimée par la différence entre l'estimation par lissage exponentiel simple EMA et l'estimation par lissage exponentiel double DEMA. Les lissages EMA et DEMA sont appliqués aux valeurs  $\hat{\lambda}_{CST}^t$  tels que :

$$\hat{\lambda}_{EMA}^t = \alpha^t \hat{\lambda}_{CST}^t + (1 - \alpha^t) \hat{\lambda}_{CST}^{t-1} \quad (5.42)$$

$$\hat{\lambda}_{DEMA}^t = \alpha^t \hat{\lambda}_{EMA}^t + (1 - \alpha^t) \hat{\lambda}_{EMA}^{t-1} \quad (5.43)$$

La constante de temps des filtres exponentiels  $\alpha^t$  est calculée en fonction de la valeur de la constante de temps du filtre CST  $l^t$  estimée à l'instant t. La force du lissage sera corrélée à la figure de mérite L, préservant ainsi l'adaptabilité du filtre aux changements d'activité. L'équation 12 présente le calcul du paramètre  $\alpha^t$  où  $\beta$  est le paramètre permettant d'ajuster la dureté du lissage exponentiel.

$$\alpha^t = \left[ 1 - \exp\left(-\frac{1}{\beta(l^t - 1)}\right) \right] \quad (5.44)$$

L'estimation finale du comptage à l'instant t, notée  $\hat{\lambda}_{CST^*}^t$ , est donnée par la formule de Brown.

$$\hat{\lambda}_{CST^*}^t = 2\hat{\lambda}_{EMA}^t - \hat{\lambda}_{DEMA}^t \quad (5.45)$$

Pour les mesures de type spectrométrique, le lissage CST\* est appliqué aux valeurs de comptage  $N_k^t$  associées à chaque canal énergétique k. Ainsi, un spectre lissé  $\varphi$  est obtenu en continu à l'instant t tel que :

$$\forall k \in [1, n_j], \quad \varphi_k^t = CST^*(N_k^t) \quad (5.46)$$

Pour l'analyse des données en post-traitement, il est possible d'appliquer le filtre dans le sens inverse du temps. Soit T le nombre d'échantillon temporel mesuré, le spectre lissé obtenu est calculé comme suit :

$$\forall t \in [0, T], \forall j \in [1, n_j], \quad (5.47)$$

$$u = [1; 2; \dots; T] \quad (5.48)$$

$$v = [T; T - 1; \dots; 1] \quad (5.49)$$

$$\psi_k^t = 0,5\{CST^*(N_u^t) + flip[CST^*(N_v^t)]\} \quad (5.50)$$

Dans le cadre de nos travaux, le spectre, alors lissé par l'application du filtrage CST\*, subit un ajustement des régions d'intérêt correspondant aux pics d'absorption totale afin d'appréhender l'évolution de leur aire nette dans le temps.

### 5.6.1.3.2 Ajustement des régions d'intérêt

En raison des variations brusques d'activités impliquées lors de ruptures de gaines, leur suivi nécessite une résolution temporelle fine dans l'évaluation de l'évolution des aires nettes et donc dans notre cas un ajustement des données sur des spectres intégrés sur une plage temporelle de

l'ordre de seulement quelques secondes. Malgré le filtrage temporel exposé précédemment, il reste complexe d'ajuster les régions d'intérêt en raison des faibles statistiques mises en jeu dans ces courtes périodes d'intégration. C'est pourquoi nous faisons le choix de travailler sur les séquences de spectres cumulés  $(\psi^1, \psi^1 + \psi^2, \dots, \sum \psi^t)$  afin de réduire cette problématique des faibles statistiques.

La région d'intérêt de chaque spectre cumulé de la séquence  $(\psi^1, \psi^1 + \psi^2, \dots, \sum \psi^t)$  est alors ajustée via une régression non linéaire par moindres carrés par la fonction H définie comme la somme d'une fonction affine et d'une fonction gaussienne avec  $(y_1, y_2, y_3, y_4, y_5)$  les paramètres à évaluer.

$$H(x) = y_1 x + y_2 + \frac{y_3}{y_4 \sqrt{2\pi}} \exp\left(-0,5 \left(\frac{x - y_5}{y_4}\right)^2\right) \quad (5.51)$$

L'ajustement de la région d'intérêt est retenu si l'erreur relative des paramètres estimés est inférieure à un seuil:

$$\frac{2\sigma_{y_i}}{y_i} < R \quad (5.52)$$

Avec  $\sigma_{y_i}$  l'écart type du paramètre  $y_i$  et R un seuil fixé par l'utilisateur (dans notre cas 0,01).

La séquence des aires nettes du pic des différents spectres cumulés  $(N_1^+, N_2^+, \dots, N_n^+)$  est alors construite par intégration des composantes gaussiennes de H(x) et la séquence des aires nettes du pic dans chaque spectre élémentaire  $(N_1, N_2, \dots, N_{n-1})$  est déterminée à partir de la séquence  $(N_1^+, N_2^+, \dots, N_n^+)$ .

$$N_i = (N_{i+1}^+ - N_i^+) \left( \frac{\Delta t}{\sum_{k/(i-1)\Delta t < t_k < i\Delta t} idle_k} \right)^2 \quad (5.53)$$

La correction par le carré du rapport entre temps réel et temps actif de la chaîne permet de prendre en compte dans l'évaluation de  $N_i$  les coups n'ayant pas été enregistrés en raison de l'empilement.

La séquence  $(A_1, A_2, \dots, A_{n-1})$  des taux de comptage moyen dans le pic d'absorption totale sur les intervalles de temps élémentaires  $\Delta t$  est définie de la manière suivante :

$$A_i = -F \ln\left(1 - \frac{N_i}{\Delta t}\right) \quad (5.54)$$

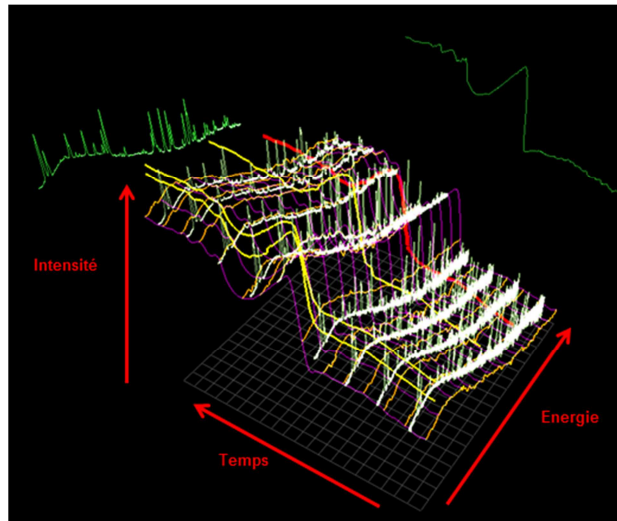
## 5.6.2 SINBAD 2D

Le développement de SINBAD 2D fait suite à celui de SINBAD. L'approche sur laquelle repose SINBAD 2D, l'approche bayésienne non paramétrique, reste identique à celle de SINBAD. Ainsi, le concept de SINBAD détaillé précédemment reste dans son intégralité valide

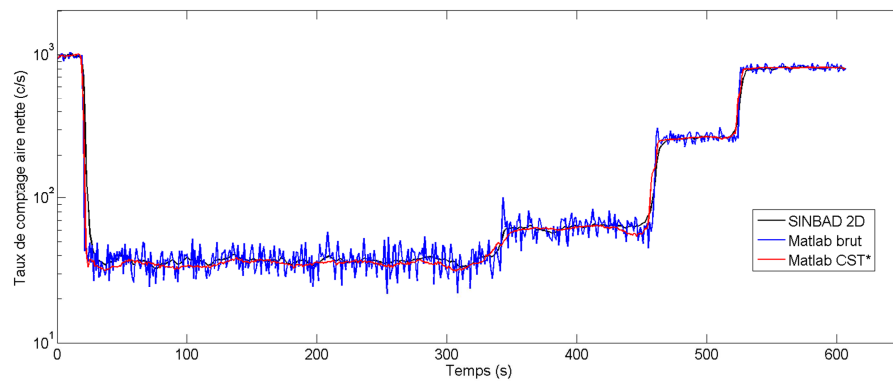
et ne fera pas l'objet d'un développement supplémentaire ici. Notons simplement que si SINBAD est dédié à la déconvolution de spectres denses, SINBAD 2D conserve cette fonctionnalité tout en ajoutant une fonctionnalité de suivi temporel. Une matrice tridimensionnelle (temps, énergie, intensité) est générée à partir des fichiers de sortie d'ADONIS. La densité de probabilité sous-jacente au spectre évoluant dans le temps est estimée via la méthode bayésienne non paramétrique déjà utilisée avec SINBAD. L'a priori ajouté sur le profil temporel est un a priori de type arbre de Pólya. SINBAD 2D permet donc de déterminer d'une part l'évolution du taux de comptage total incident en fonction du temps et d'autre part l'évolution du taux de comptage propre à chaque pic détecté via une correction par le temps actif stocké lors de la construction de la matrice (temps, énergie, intensité). Il est à noter qu'une correction des empilements est également implémentée dans le suivi des cinétiques des différents pics. La Figure 5-12 illustre le suivi temporel d'un spectre acquis lors d'une rupture de gaine sur la boucle d'irradiation ISABELLE-1 (voir chapitre 6) avec SINBAD 2D.

### 5.6.3 Comparaison entre les algorithmes développés au sein de cette thèse et SINBAD 2D

Si le début du développement de SINBAD 2D n'était pas prévu durant le déroulement de cette thèse, la possibilité de tester une version bêta à partir du début de l'année 2016 a permis d'apporter une redondance aux algorithmes de suivi de ruptures de gaines développés jusque-là. Une comparaison des deux méthodes dans l'estimation de l'évolution des aires nettes des pics d'absorption totale est ici présentée. Un poste de mesure a été installé au sein du laboratoire associant à la chaîne de spectrométrie gamma ADONIS le détecteur HPGe Canberra GR2021 utilisé tout au long de cette thèse pour les essais sur site (voir chapitre 6). Une source scellée de  $^{137}\text{Cs}$  est placée devant la diode HPGe durant l'acquisition, la distance séparant la source du détecteur est modifiée de la manière la plus rapide possible afin d'obtenir un changement brutal du taux de comptage indicent. La Figure 5-13 illustre le suivi temporel de l'aire nette du pic d'absorption total à 661,6 keV en utilisant d'une part l'algorithme développé durant cette thèse implémentant le filtre CST\* et d'autre part SINBAD 2D. Les deux approches présentent des résultats similaires. Dans les deux cas, un débruitage significatif est observé et les dynamiques entre les différents paliers sont respectées.



**Figure 5-12 : Illustration de SINBAD 2D sur le suivi temporel des pics d'absorption totale lors d'une rupture de gaine sur la boucle ISABELLE-1**



**Figure 5-13 : Suivi de l'évolution de l'aire nette du pic à 661,6 keV du  $^{137}\text{Cs}$  via l'algorithme Matlab développé et SINBAD 2D**

## 5.7 Conclusion

Les outils pour les applications de spectrométrie gamma conventionnelles présentent des limitations pouvant être critiques pour l'application de suivi de ruptures de gaines combustible envisagée dans cette thèse. Les hauts taux de comptage, les variations brusques d'activités potentiels, ainsi que la richesse des radionucléides en présence lors d'une rupture de gaine nous emmènent à envisager d'autres outils plus adaptés à cette application. Si des parades telles que les systèmes PUR existent sur les analyseurs conventionnels afin de gérer la problématique d'empilement des impulsions liée aux hauts taux de comptage, ces dernières conservent leurs limitations. De plus, en raison de son paramétrage optimisé pour une forme d'impulsion donnée, le filtrage à réponse impulsionnelle finie implémenté dans ces analyseurs est non adapté à une problématique de variations brutales d'activités. La chaîne de spectrométrie gamma ADONIS présentée dans ce chapitre apparaît comme une bonne candidate pour l'application visée. Son

filtrage à réponse impulsionnelle infinie lui permet de s'adapter aux différentes formes d'impulsion et de rester opérationnelle à très hauts taux de comptage. ADONIS est donc la chaîne de spectrométrie gamma retenue dans le cadre de ces travaux afin d'être testée pour le suivi de ruptures de gaines.

Dans ce cadre, le traitement des spectres gamma acquis représente également un challenge. Les spectres attendus suite à une rupture de gaine sont très denses en raison de la signature gamma des produits d'activation à laquelle il faut ajouter celle des nombreux produits de fission relâchés. L'outil d'analyse de spectre SINBAD mettant en œuvre une méthode bayésienne non paramétrique apparaît adapté pour la déconvolution de tels spectres. Une étude comparative avec la méthode embarquée dans les logiciels de spectrométrie gamma conventionnels a été réalisée et a permis de montrer l'apport de SINBAD dans l'analyse des pics notamment en cas de fortes superpositions entre ces derniers. De plus, son aspect non paramétrique fait de SINBAD un outil convivial et facile d'accès ne nécessitant pas le paramétrage parfois complexe de la méthode IFD. Pour ces raisons, l'utilisation de SINBAD pour l'analyse de spectres issus de ruptures de gaines est préférée dans cette thèse.

Le suivi des cinétiques de relâchement est également nécessaire au diagnostic de ruptures de gaines. Dans l'optique du suivi de ruptures de gaines sur la boucle ISABELLE-1 présenté dans le chapitre suivant, des algorithmes implémentés sous Matlab ont été développés au cours de cette thèse et couplés au filtrage CST\* afin d'évaluer l'évolution dans le temps du taux de comptage total et des aires nettes des pics d'absorption totale à partir des fichiers de sortie d'ADONIS. Dans la dernière année de cette thèse, l'intérêt porté à SINBAD a donné lieu aux premiers développements de SINBAD 2D, où la méthode bayésienne non paramétrique utilisée dans SINBAD permet ici de suivre l'évolution dans le temps du signal étudié, apportant ainsi une redondance avec les algorithmes Matlab dédiés au suivi temporel développés auparavant dans cette thèse. La comparaison des deux méthodes converge vers des résultats similaires.

La mise en œuvre de ces différents outils est illustrée via le suivi de ruptures de gaines sur la boucle d'irradiation ISABELLE-1 d'OSIRIS présenté dans le chapitre 6 suivant.

# 6 SUIVI DE RUPTURES DE GAINES SUR LA BOUCLE ISABELLE 1 PAR SPECTROMETRIE GAMMA HAUTS TAUX DE COMPTAGE

## 6.1 Introduction

Ce chapitre est dédié à la présentation des essais réalisés durant cette thèse sur la boucle d'irradiation de crayons combustible ISABELLE 1 du réacteur OSIRIS pour la validation de la chaîne de spectrométrie gamma ADONIS dans le cadre de la problématique de détection des ruptures de gaines. La chaîne de spectrométrie, installée sur site durant presque deux années, a permis de suivre un grand nombre d'irradiation de crayons combustible testés. Dans un premier temps, le réacteur expérimental OSIRIS ainsi que la boucle d'irradiation ISABELLE 1 sont présentés. Le déploiement de la chaîne ADONIS sur la boucle est ensuite exposé. Le calcul du rendement de détection du poste de mesure permettant une quantification des radioéléments observés est détaillé. Enfin, ce chapitre s'attarde plus particulièrement sur trois campagnes d'irradiation :

- une rampe de puissance standard sans perte d'étanchéité,
- une rampe de puissance standard avec perte d'étanchéité,
- une rampe de forte puissance avec perte d'étanchéité.

## 6.2 Le réacteur OSIRIS

Le réacteur OSIRIS est un réacteur expérimental de type MTR (*Material Testing Reactor*), construit sur le site du CEA Saclay et qui divergea pour la première fois en 1966. Ce réacteur de type piscine, à eau légère et à cœur ouvert, peut délivrer une puissance maximale de 70 MWth. Son cœur est composé de 38 éléments combustibles et de 6 éléments de commande. Le principal rôle du réacteur est de produire un haut flux de neutrons ( $3.10^{18}$  n.m<sup>-2</sup>s<sup>-1</sup> en flux thermique et  $4,5.10^{18}$  n.m<sup>-2</sup>s<sup>-1</sup> en flux rapide dans le cœur) auxquels sont exposés des combustibles ou des matériaux dans le but de soutenir le parc électronucléaire français. L'allongement de la durée de vie des centrales actuelles, la mise au point de combustibles plus performants et la conception des réacteurs du futur constituent les motivations sous-jacentes aux nombreux programmes expérimentaux entrepris sur OSIRIS, avec pour principaux commanditaires le CEA, EDF et AREVA. Les comportements de tous les constituants de l'élément combustible sous flux peuvent ainsi être étudiés et des phases d'exploitation d'un réacteur électrogène peuvent être reproduites. L'important flux de neutrons permet entre autres la réalisation de tests de vieillissement accéléré des matériaux, puisqu'il est alors possible de simuler en quelques mois l'équivalent de plusieurs années d'irradiation dans une centrale nucléaire. Des qualifications des combustibles et des matériaux pour les futurs réacteurs sont également réalisées au sein d'OSIRIS. La production de radioéléments artificiels par transmutation est aussi possible grâce à l'important flux de neutrons. Ces radioéléments sont principalement utilisés pour des traitements en médecine nucléaire. On distingue :

- les émetteurs gamma utilisés pour le traitement de cancers et de tumeurs comme l'iode 131 et l'iridium 192,
- les émetteurs bêta utilisés dans des traitements locaux contre certaines douleurs comme le samarium 153 utilisé comme antalgique des cancers osseux.

Il est également important de souligner que le réacteur OSIRIS fait partie des quelques producteurs mondiaux de technétium 99 métastable utilisé comme traceur dans le domaine de l'imagerie médicale. Le réacteur irradie aussi des lingots de silicium mono-cristallin pour le compte de l'industrie électronique. Un dopage homogène type N du silicium est ainsi réalisé par capture neutronique.

Le réacteur OSIRIS a été arrêté en décembre 2015. Son successeur, le réacteur Jules-Horowitz (RJH), est actuellement en cours de construction sur le site du CEA Cadarache et sa divergence est prévue au début de la prochaine décennie.



## 6.3 La boucle d'irradiation ISABELLE 1

La boucle ISABELLE 1 est une boucle d'irradiation permettant d'effectuer des rampes de puissance sur des crayons combustible neufs ou re-fabriqués dans des conditions thermohydrauliques, neutroniques et chimiques représentatives des réacteurs de puissance à eau pressurisée (pression de 150 bars, température de 350 °C). Sa conception et sa localisation en périphérie du cœur permettent son positionnement, sa mise en place et son retrait, tout en maintenant le réacteur OSIRIS en fonctionnement.

### 6.3.1 Descriptif

#### 6.3.1.1 Partie en pile

La Figure 6-1 illustre l'agencement de la boucle ISABELLE 1. Le crayon combustible à irradier est positionné dans un porte échantillon permettant le confinement de ce dernier. Initialement d'une longueur de l'ordre de 4 m dans les REP commerciaux, le crayon est re-fabrique [117], [118] afin d'atteindre une taille limitée à 500 mm compatible avec la boucle ISABELLE 1. Le porte-échantillon est fixé à un support mobile en périphérie du cœur d'OSIRIS. Les transitoires de puissance sont alors obtenus par l'avancement ou le recul plus ou moins rapide de ce support. Le refroidissement de l'élément est assuré en convection forcée par un débit d'eau amplifié via un système de tuyère. Le caloporteur est préalablement conditionné en amont dans la casemate associée à la boucle d'essais. Le canal d'essai dans lequel circule ce dernier est isolé thermiquement de l'eau de la piscine grâce à une lame de gaz contenue dans une double paroi. La puissance dégagée par le crayon combustible est suivie en temps réel par un bilan thermique réalisé via des capteurs de débit, de pression et de température. Elle peut également être évaluée par mesures neutroniques réalisées à l'aide de collectrons. Un capteur LVDT (« *Linear Variable Differential Transformer* ») permet de mesurer la variation de longueur du crayon combustible lors des variations de puissance.

Un réchauffeur électrique d'une puissance de 30 kW est positionné sur le circuit d'eau aller en amont du crayon afin de conditionner la température du caloporteur en entrée. Il est associé à un échangeur-récupérateur fonctionnant à contre-courant et permettant de récupérer une partie de la chaleur transportée par le circuit retour (aval du crayon).

Plus en aval, un échangeur de puissance d'une puissance maximale de 60 kW permet l'évacuation de la puissance résiduelle du caloporteur par convection naturelle avec l'eau de la piscine.

#### 6.3.1.2 Partie hors pile

L'alimentation et la pressurisation du circuit sont assurées par un ensemble pompe-pressuriseur thermique situé dans la casemate dédiée. Avant d'être injectée dans le circuit, l'eau est dans un

premier temps conditionnée chimiquement via une station située en galerie couronne du réacteur. Cette station permet d'alimenter en eau traitée un bac de récupération pouvant contenir 66 litres d'eau dans les conditions nominales pressurisés à deux bars via un ciel d'azote. L'eau contenue dans le bac est envoyée au pressuriseur via une pompe de circulation avant d'être injectée.

La radioactivité au sein de la boucle est surveillée via une DRG neutrons et gamma. L'analyse de prélèvements d'eau réalisés dans une boîte à gants située sur le circuit retour complète ces mesures. Les liaisons entre la partie « hors pile » et « en pile » sont réalisées via des connexions électriques ou mécaniques contenues dans des gaines métalliques flexibles pressurisées. La Figure 6-1 présente schématiquement le fonctionnement global de la boucle.

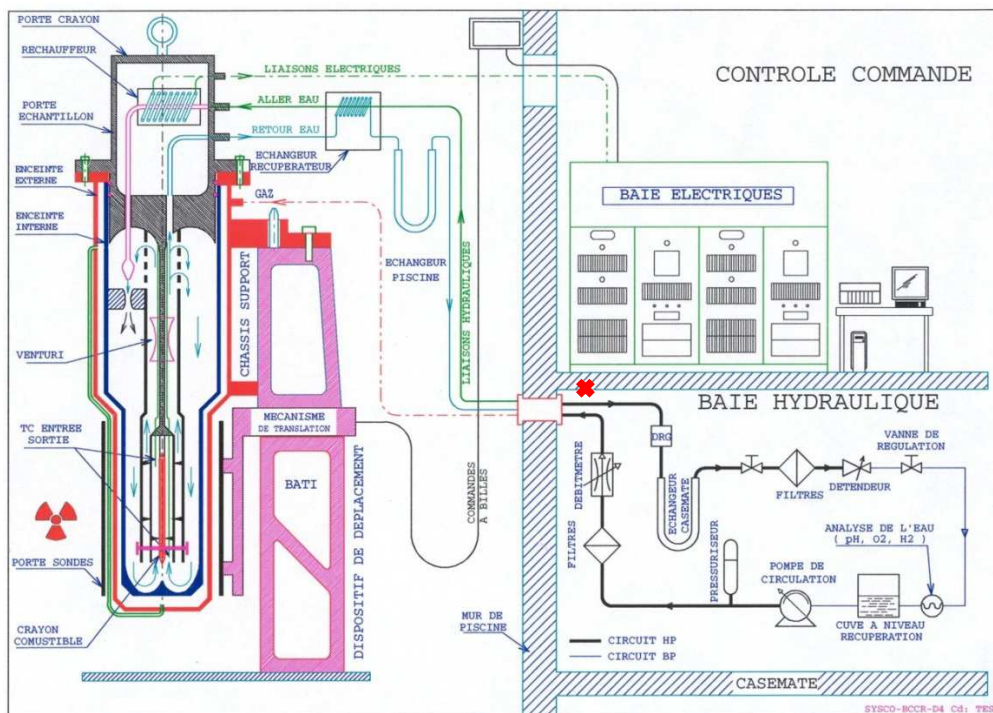


Figure 6-1 : Schéma de principe de la boucle d'irradiation ISABELLE 1

### 6.3.2 Les rampes de puissance

L'objectif des rampes de puissance menées au sein de la boucle ISABELLE 1 est de faire subir au crayon combustible testé des transitoires de puissance représentatifs de ceux rencontrés dans les REP, qu'ils soient normaux ou incidentels. Deux types de rampes suivies durant cette thèse sont distingués:

- Les rampes technologiques dont l'objectif est de déterminer par encadrement du seuil de rupture de gaine les limites technologiques des crayons combustibles irradiés. Ce seuil est fonction des caractéristiques propres de chaque crayon testé et du taux de combustion représentatif des différentes étapes de sa vie. Ces rampes suivent différents

scénarios de sollicitation, représentatifs ou enveloppes de ceux s'étant produits ou pouvant se produire dans les réacteurs concernés par l'utilisation de ce type d'éléments. Ces rampes peuvent conduire à une perte d'étanchéité par interaction pastille-gaine, l'irradiation étant alors stoppée via le recul de la boucle.

- La rampe de forte puissance permet d'estimer les radioéléments relâchés hors du crayon combustible lorsqu'une rupture de gaine a eu lieu. Lors de cette rampe, l'irradiation est prolongée après l'apparition de la perte d'étanchéité.

Les variations de puissance sont réalisées via le déplacement plus ou moins rapide de la boucle vis-à-vis du cœur du réacteur. Ce déplacement est fonction de la puissance désirée. La puissance linéique maximale ainsi accessible par un crayon combustible dans la boucle ISABELLE 1 est de  $620 \text{ W.cm}^{-1}$ .

Le déroulement standard d'une rampe de puissance est schématisé sur la Figure 6-2. Sont distingués:

- Le pré-palier d'une puissance d'environ  $100 \text{ W.cm}^{-1}$  durant lequel des tests liés au bon fonctionnement de la boucle sont réalisés,
- Le palier de conditionnement durant lequel le crayon combustible est irradié à un niveau de puissance proche de celui atteint en fin d'irradiation dans le réacteur électrogène,
- Le transitoire de puissance (ou rampe) effectué à vitesse constante,
- Le palier haut durant lequel la puissance visée est maintenue pendant une durée fonction de l'éventuelle apparition de perte d'étanchéité.

Le recul de la boucle est déclenché sur détection d'une rupture de gaine.

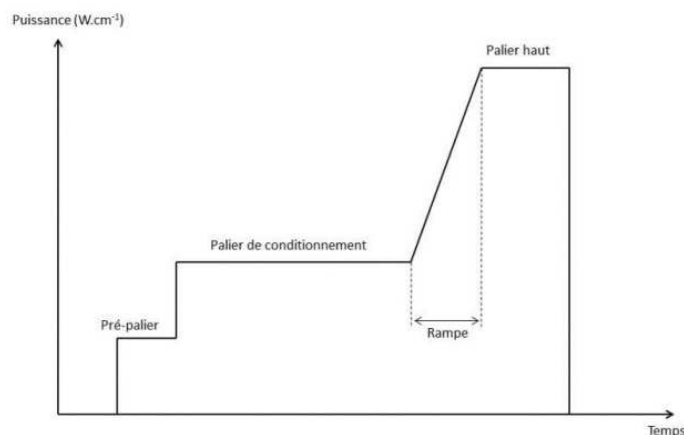


Figure 6-2 : Schéma du déroulement d'une rampe de puissance

## 6.4 Le poste de mesure

### 6.4.1 Objectif

Le SIREN (Service d'Irradiations en Réacteur et d'Etudes Nucléaires) est en charge des irradiations réalisées sur la boucle ISABELLE 1. Le besoin lié à cette thèse de valider la chaîne ADONIS pour le suivi de rupture de gaine a conduit à mettre en place une collaboration avec le SIREN.

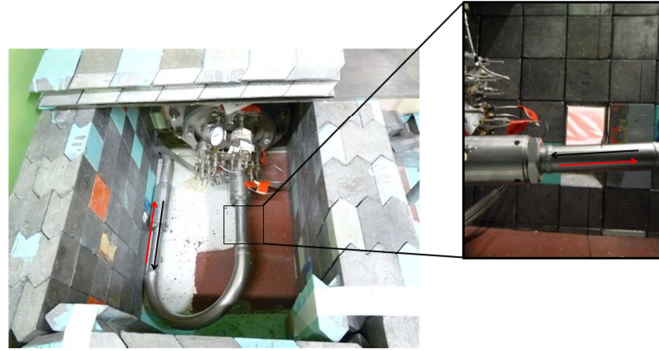
Un poste de mesure impliquant la chaîne de spectrométrie gamma ADONIS a donc été installé sur la boucle ISABELLE 1, afin de permettre le suivi de la rupture de gaine prévue lors de la rampe de forte puissance. Grâce aux différents outils présentés dans le chapitre 5, il est ainsi possible d'estimer le taux de comptage total, d'identifier et de quantifier les radionucléides présents dans le caloporteur.

De précédentes irradiations auront permis l'optimisation du poste de mesure et servi de support au développement des algorithmes nécessaires au suivi de rupture de gaine.

### 6.4.2 Mise en œuvre

#### 6.4.2.1 Emplacement du poste de mesure

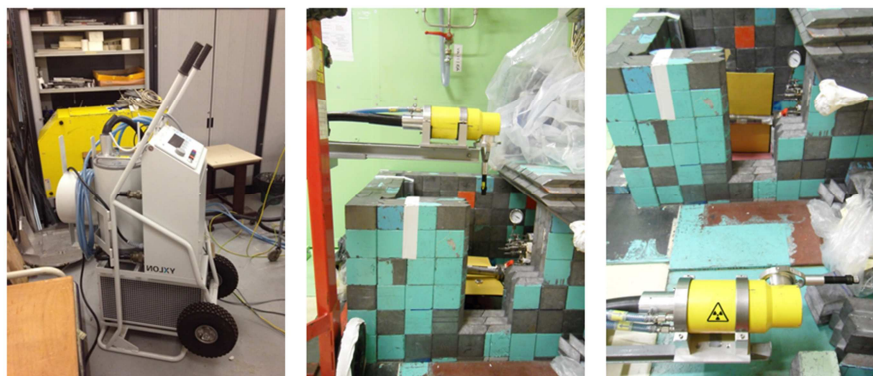
Au vu des capacités de la chaîne de spectrométrie gamma ADONIS à traiter les très hauts taux de comptage, il a été décidé d'installer le poste de mesure le plus en amont possible sur la boucle ISABELLE 1. Le positionnement choisi se situe juste après l'élément combustible sur le circuit retour dans le but d'obtenir un taux de comptage maximal et de suivre les radioéléments ayant des durées de vie courtes dans un scénario de rupture de gaine. Ainsi, le détecteur HPGe utilisé dans le cadre de cette expérience a été installé de façon à viser la tuyauterie comprenant les circuits aller et retour de la boucle derrière le mur de la piscine au niveau -4 mètres. La localisation du poste de mesure, correspondant à un temps de transit du caloporteur de 65 secondes entre le crayon et le poste de mesure, est signalée par une croix rouge sur la Figure 6-1. En raison des fortes activités transitant dans la boucle durant les irradiations, les circuits de cette dernière en sortie de piscine sont contenus dans une enceinte plombée dont les murs sont épais de 15 cm. La sortie du circuit à terre au voisinage du mur piscine est représentée sur la Figure 6-3.



**Figure 6-3 : Partie du circuit à terre au voisinage du mur piscine et tuyauterie visée par le détecteur, les circuits aller (noir) et retour (rouge) sont contenus dans un même tube assurant la fonction de seconde barrière.**

#### 6.4.2.2 Configuration de la tuyauterie

Comme illustré sur la Figure 6-3, une difficulté réside dans la proximité des circuits aller et retour tous les deux contenus dans le même tube en entrée et sortie du mur piscine. Le résultat de la mesure en ce point est, par conséquent, une convolution des deux termes sources que représentent les radioéléments circulant dans chacun des deux circuits aller et retour. Afin de faciliter l'analyse des mesures, il a donc été envisagé d'isoler le circuit retour. Aucune intervention n'ayant été possible sur le circuit, une collimation à fente est envisagée sur ce dernier. Afin d'étudier la faisabilité d'une telle collimation, une radiographie X de la canalisation a été réalisée dans le but de déterminer l'agencement des différents circuits à l'intérieur de la seconde barrière. Cette radiographie a été réalisée grâce à la participation du DISC (Département Imagerie Simulation pour le Contrôle) du CEA Saclay à l'aide d'un générateur de rayons X présenté en Figure 6-4.



**Figure 6-4 : Générateur X utilisé pour la radiographie de la tuyauterie**

Le résultat de cette radiographie X est présenté en Figure 6-5. La tuyauterie visée contient 6 mini-tubes inox parmi lesquels se retrouvent le circuit « aller », le circuit « retour », le circuit de la lame de gaz (2 tubes) et le circuit d'eau de mesure Venturi. Le circuit « aller » est identifié en vert et le circuit « retour » en bleu. Le détecteur HPGe étant positionné dans l'axe « axe de tir

côté », le circuit retour apparaît donc plus proche de ce dernier. En revanche, une superposition selon cet axe avec le circuit « aller » situé derrière le circuit « retour » est constatée. Au vu de l'agencement des deux circuits considérés, il apparaît impossible de déployer une collimation visant à isoler totalement le circuit « retour » d'une contribution, même plus faible, du circuit « aller ». La piste de l'isolement du circuit « retour » est par conséquent écartée. Néanmoins, il demeure possible en cas de rupture de gaine de ne considérer uniquement qu'une contribution du circuit « retour » durant une période de 290 secondes à compter de l'apparition d'une signature de rupture de gaine par le détecteur HPGe compte tenu de la durée nécessaire à l'eau pour revenir au niveau du point de mesure dans le circuit « aller ».

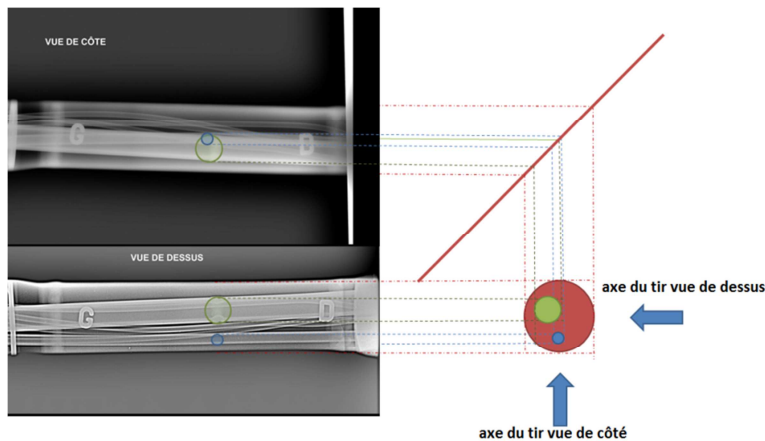


Figure 6-5 : Positions des différents circuits, aller en vert, retour en bleu

#### 6.4.2.3 Installation du détecteur HPGe

Le détecteur utilisé afin de suivre les irradiations est le détecteur Canberra de type N, modèle GR2021 (efficacité relative de 20%, FWHM de 2,1 keV à 1332 keV), refroidi à l'azote liquide et précédemment cité dans ce manuscrit. Ce dernier est présenté en Figure 6-6.

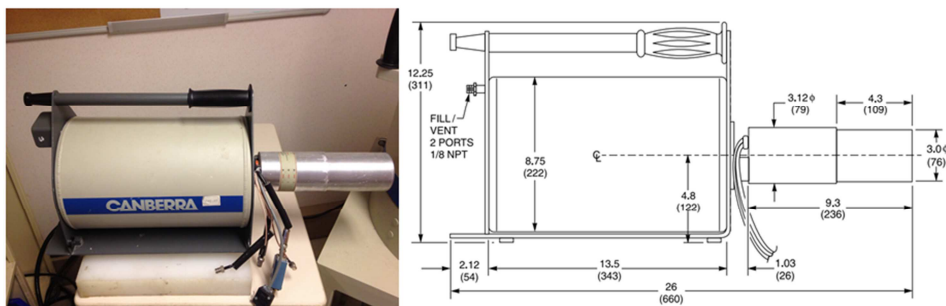
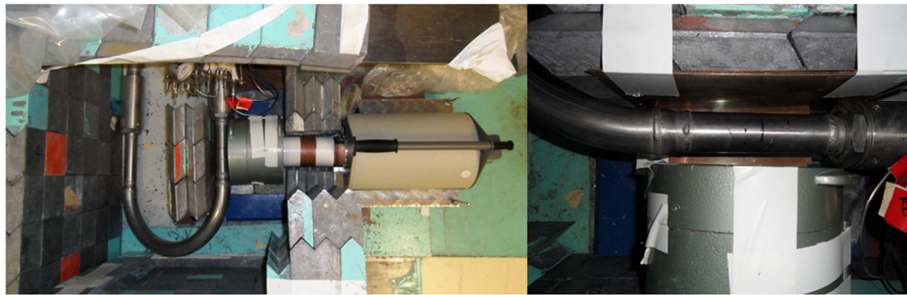


Figure 6-6 : Détecteur Canberra GR2021. A gauche : vue du détecteur. A droite : plan coté de ces dimensions

Afin de réduire l'impact des rayonnements X de fluorescence du plomb, une épaisseur d'un millimètre de cuivre est disposée tout autour de la tête du détecteur. De plus, afin de limiter les vibrations du détecteur notamment liées aux pompes présentes à proximité du poste de mesure,

ce dernier est équipé de pieds *silentblocks*. Une ouverture a été réalisée dans l'enceinte de plomb afin de libérer un passage pour la tête du détecteur. Un support dont la hauteur est ajustable a été conçu afin d'aligner le détecteur dans l'axe de la tuyauterie. L'intensité des relâchements suite à une rupture de gaine n'étant pas prévisible, la distance tuyauterie-détecteur est fixée à 20 cm. Un blindage est également installé à l'intérieur de l'enceinte pour, d'une part, limiter l'impact des rayonnements diffusés dans cette dernière, et, d'autre part, isoler une portion de la tuyauterie (portion encadrée sur la Figure 6-3), simplifiant ainsi la géométrie de la source émettrice. Ce blindage est composé d'une couronne de plomb de 5 cm d'épaisseur sur une longueur de 15 cm dans laquelle est positionnée l'extrémité de la tête du détecteur. Un blindage de plomb recouvert de 2 mm de cuivre est également disposé derrière et sous la portion de tuyauterie visée. Le dispositif est présenté en Figure 6-7.



**Figure 6-7 : Détecteur HPGe et blindage associé**

#### 6.4.2.4 La reconstitution de la protection radiologique

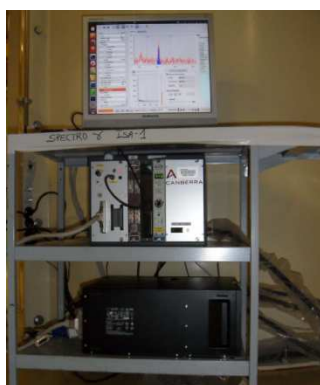
L'ouverture réalisée dans l'enceinte de plomb afin d'insérer le détecteur est potentiellement source de fuite pour les rayonnements, il est donc nécessaire de limiter au maximum ces dernières. Afin de combler ces lacunes, des protections souples de billes de plomb sont disposées dans l'ouverture, ainsi qu'à la base de la tête du détecteur. Cette solution provisoire sera par la suite remplacée par l'usinage d'un bloc de plomb aux dimensions de la tête du détecteur comme illustré sur la Figure 6-8.



**Figure 6-8 : Solutions provisoire (à gauche) et définitive (à droite) pour la reconstitution de la paroi de l'enceinte**

#### 6.4.2.5 Le poste d'acquisition

Le poste d'acquisition présenté en Figure 6-9 est composé d'un rack NIM incorporant une haute tension et l'électronique ADONIS ainsi que du PC d'acquisition dédié à l'enregistrement et à la visualisation des données. La connexion au détecteur HPGe est réalisée via un câble de dix mètres permettant de déporter le poste d'acquisition en retrait de la zone de mesure. Cette configuration permet de limiter la dose intégrée lors des interventions avec la boucle en fonctionnement et de limiter l'impact de la dose gamma sur l'électronique. Par la suite, un report de l'affichage est réalisé au niveau 0 du hall pile.



**Figure 6-9 : Poste d'acquisition**

#### 6.4.3 Activités volumiques au point de mesure

Afin de déterminer les activités transitant dans la boucle au point de mesure à partir de l'analyse des spectres en énergie issus d'ADONIS, le rendement de détection du poste de mesure est déterminé via une caractérisation du détecteur par simulation Monte-Carlo et la simulation de sa réponse en énergie dans la configuration implémentée sur ISABELLE 1.

##### 6.4.3.1 Caractérisation de la diode par simulation Monte-Carlo

La confrontation de la simulation à l'expérience montre très fréquemment l'apparition de biais pouvant atteindre plusieurs dizaines de pour cent sur l'efficacité absolue de détection des détecteurs HPGe si l'on considère les données constructeur [119]. Une méthode permettant d'optimiser le modèle du détecteur et ajuster les résultats de simulations sur l'expérience est présentée dans la littérature [120]. Un ajustement de la géométrie du détecteur portant sur les dimensions du cristal ou encore la distance cristal-fenêtre d'entrée permet alors une modélisation plus juste pouvant être validée par comparaison des aires nettes des pics d'absorption totale obtenues avec des sources étalons ponctuelles en laboratoire. Un ajustement du modèle numérique de la diode HPGe Canberra GR2021 utilisée sur la boucle ISABELLE 1 a été réalisé. L'objectif consistait à ajuster le modèle Monte Carlo du détecteur sachant que ce dernier venait de subir un recuit. Cette caractérisation est effectuée grâce à trois sources de césium 137, cobalt 60 et baryum 133 placées à différentes distances du détecteur et dont les



activités sont connues. Les efficacités de détection expérimentales et simulées liées aux aires nettes des pics d'absorption totale sont comparées. Le résultat de l'étalonnage est résumé dans le Tableau 6-1. Un biais oscillant entre 15 et 34% selon les énergies et distances considérées est observé pour une modélisation reposant sur les données constructeur. Une réduction du diamètre extérieur du cristal de germanium de 4 mm permet de définir un modèle pour lequel les biais sont inférieurs pour la grande majorité à 5%. Ce modèle validé avec une précision inférieure à 5% sera utilisé pour déterminer le rendement de détection du poste de mesure sur la boucle ISABELLE 1.

Source-détecteur (cm)	Energie (keV)	$\epsilon_{exp}$	$\epsilon_{constructeur}$	$\frac{\epsilon_{constructeur}}{\epsilon_{exp}}$	$\epsilon_{modifié}$	$\frac{\epsilon_{modifié}}{\epsilon_{exp}}$
5	661	5,628 10 <sup>-3</sup>	7,186 10 <sup>-3</sup>	1,277	5,752 10 <sup>-3</sup>	1,022
	1173	3,173 10 <sup>-3</sup>	4,207 10 <sup>-3</sup>	1,326	3,306 10 <sup>-3</sup>	1,042
	1332	2,784 10 <sup>-3</sup>	3,723 10 <sup>-3</sup>	1,337	2,919 10 <sup>-3</sup>	1,049
10	81	1,099 10 <sup>-2</sup>	1,365 10 <sup>-2</sup>	1,242	1,171 10 <sup>2</sup>	1,065
	276	5,114 10 <sup>-3</sup>	6,370 10 <sup>-3</sup>	1,246	5,263 10 <sup>-3</sup>	1,029
	303	4,469 10 <sup>-3</sup>	5,782 10 <sup>-3</sup>	1,294	4,736 10 <sup>-3</sup>	1,060
	356	3,825 10 <sup>-3</sup>	4,883 10 <sup>-3</sup>	1,277	3,971 10 <sup>-3</sup>	1,038
	661	1,990 10 <sup>-3</sup>	2,599 10 <sup>-3</sup>	1,306	2,048 10 <sup>-3</sup>	1,029
	1173	1,181 10 <sup>-3</sup>	1,532 10 <sup>-3</sup>	1,297	1,190 10 <sup>-3</sup>	1,007
	1332	1,039 10 <sup>-3</sup>	1,370 10 <sup>-3</sup>	1,318	1,060 10 <sup>-3</sup>	1,020
15	661	1,035 10 <sup>-3</sup>	1,310 10 <sup>-3</sup>	1,266	1,038 10 <sup>-3</sup>	1,002
	1173	6,031 10 <sup>-4</sup>	7,725 10 <sup>-4</sup>	1,281	5,968 10 <sup>-4</sup>	0,989
	1332	5,502 10 <sup>-4</sup>	6,864 10 <sup>-4</sup>	1,247	5,344 10 <sup>-4</sup>	0,971
20	81	3,263 10 <sup>-3</sup>	3,770 10 <sup>-3</sup>	1,155	3,213 10 <sup>-3</sup>	0,985
	276	1,630 10 <sup>-3</sup>	1,901 10 <sup>-3</sup>	1,167	1,564 10 <sup>-3</sup>	0,960
	303	1,471 10 <sup>-3</sup>	1,730 10 <sup>-3</sup>	1,176	1,411 10 <sup>-3</sup>	0,960
	356	1,237 10 <sup>-3</sup>	1,460 10 <sup>-3</sup>	1,180	1,182 10 <sup>-3</sup>	0,955
	661	6,395 10 <sup>-4</sup>	7,933 10 <sup>-4</sup>	1,240	6,253 10 <sup>-4</sup>	0,978
	1173	3,814 10 <sup>-4</sup>	4,674 10 <sup>-4</sup>	1,225	3,625 10 <sup>-4</sup>	0,950

20	1332	3,335 10 <sup>-4</sup>	4,175 10 <sup>-4</sup>	1,252	3,173 10 <sup>-4</sup>	0,951
25	661	4,288 10 <sup>-4</sup>	5,258 10 <sup>-4</sup>	1,226	4,204 10 <sup>-4</sup>	0,980
	1173	2,476 10 <sup>-4</sup>	3,144 10 <sup>-4</sup>	1,269	2,439 10 <sup>-4</sup>	0,985
	1332	2,188 10 <sup>-4</sup>	2,780 10 <sup>-4</sup>	1,270	2,154 10 <sup>-4</sup>	0,984
30	661	3,092 10 <sup>-4</sup>	3,826 10 <sup>-4</sup>	1,238	3,009 10 <sup>-4</sup>	0,973
	1173	1,829 10 <sup>-4</sup>	2,253 10 <sup>-4</sup>	1,232	1,775 10 <sup>-4</sup>	0,971
	1332	1,626 10 <sup>-4</sup>	2,000 10 <sup>-4</sup>	1,230	1,550 10 <sup>-4</sup>	0,953

**Tableau 6-1 : Comparaison entre efficacités de détection expérimentale et simulée, avant et après ajustement du modèle Monte Carlo**

#### 6.4.3.2 Simulation de la réponse du détecteur

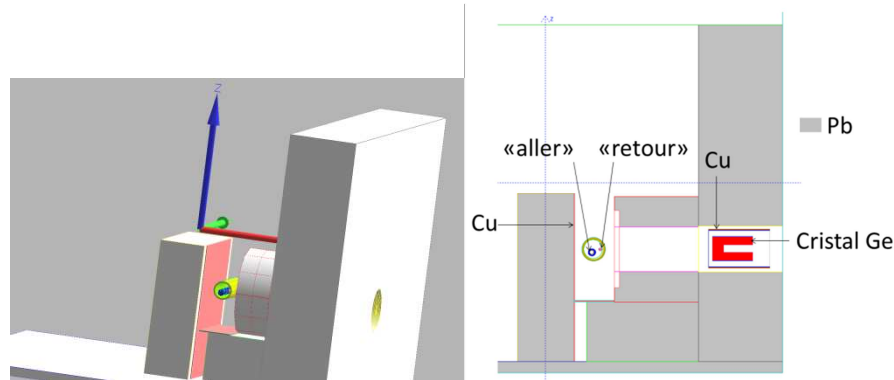
Deux cas de figure sont à distinguer ici, correspondant à deux courbes de rendement de détection total (géométrique + intrinsèque) du poste de mesure :

- Le caloporteur chargé de radioéléments circule dans le circuit « retour » et n'est pas encore parvenu dans le circuit « aller » au niveau du point de mesure. La durée de transit entre les deux points des circuits « retour » et « aller » en face du détecteur est de 290 secondes.
- Le caloporteur est parvenu au niveau du circuit « aller » en face du détecteur.

Dans le premier cas, seul le circuit « retour » est utilisé comme volume source dans la simulation pour l'estimation du rendement de détection  $\varepsilon_{retour}$ . Dans le second cas, deux rendements de détection correspondant à une émission gamma depuis le circuit « retour » d'une part et depuis le circuit « aller » d'autre part sont déterminés. Le rendement de détection global est alors une combinaison linéaire des deux rendements individuels  $\varepsilon_{aller}$  et  $\varepsilon_{retour}$  pondérés des fractions volumiques des deux circuits vus par le détecteur. Dans ce cas, l'hypothèse d'un caloporteur homogène aux deux points de la boucle est retenue. Si cette dernière est discutable considérant des radioéléments de très faibles périodes, elle reste cependant valable pour une majorité de durées de vie grandes devant les 290 secondes séparant les deux points du circuit. Le rendement de détection impliquant les deux circuits s'écrit alors selon l'équation 6.1. Les courbes de rendement de détection du poste de mesure sont déterminées via une série de simulations MCNPX des réponses du détecteur (utilisation du tally F8) aux différentes énergies d'émission variant par pas de 10 keV.

$$\varepsilon_{tot} = \frac{V_{aller}}{V_{aller} + V_{retour}} \varepsilon_{aller} + \frac{V_{retour}}{V_{aller} + V_{retour}} \varepsilon_{retour} \quad (7.1)$$

Le poste de mesure est dans un premier temps modélisé via les relevés sur site, les radiographies X de la tuyauterie et le modèle validé de la diode précédemment discuté. Les dimensions des mini-tubes correspondant respectivement aux circuits « aller », « retour » et à la tuyauterie renfermant les deux sont de 8,9×13,5 mm, 4×6 mm et 31,5×42,2 mm (diamètre intérieur × diamètre extérieur). La Figure 6-10 illustre cette modélisation.

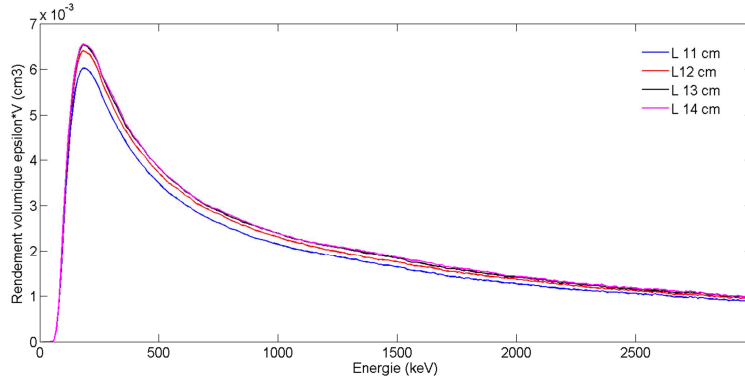


**Figure 6-10 : Modélisation MCNPX du poste de mesure. A gauche : vue 3D. A droite : coupe 2D**

Afin d'accélérer la convergence statistique des nombreuses simulations à mener, une simplification de la géométrie est envisagée. Après observation de la conservation de la réponse du détecteur, le transport de particules dans les murs de plomb de l'enceinte est supprimé, excepté celui dans lequel est incrustée la diode. De plus, la modélisation de l'ensemble des circuits compris dans l'enceinte apparaît complexe en raison de l'enchevêtrement de ces derniers à l'intérieur du tube principal sur une longueur importante. De plus, celle-ci n'apporte pas de contribution pour la comptabilisation des photons directs (non diffusés) utilisée pour le calcul du rendement de détection. Pour cette raison, la longueur minimale de tuyauterie modélisée permettant la convergence de la réponse du détecteur est déterminée. La Figure 6-11 représente le rendement de détection pour un volume source correspondant au circuit « aller » pour plusieurs longueurs de tuyauterie modélisées. Ces rendements issus de MCNPX et exprimés en «interactions comptabilisées dans le pic d'absorption totale par gamma source généré» apparaissent de plus en plus faibles avec la longueur croissante de circuit modélisé en raison d'une « dilution » des tirages aléatoires dans un volume source plus important.

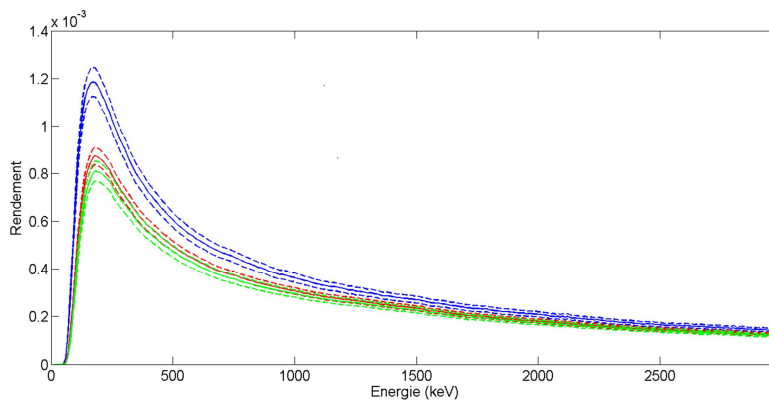
Afin de comparer les réponses du détecteur pour différentes longueurs modélisées, les rendements volumiques  $\varepsilon V$  seront privilégiés avec  $V$  le volume de la source modélisée afin de considérer une densité de tirages aléatoires constante. La longueur minimale de tuyauterie à

modéliser n'entraînant pas de biais dans le rendement de détection calculé et minimisant ainsi le temps de calcul est estimée à 13 cm. Cette longueur sera retenue dans la suite des simulations.



**Figure 6-11 : Réponse du détecteur pour différentes longueurs de tuyauterie modélisées (circuit « aller »)**

Les rendements de détection (exprimés par gamma source) correspondant au circuit « retour » et à l'ensemble des deux circuits sont présentés en Figure 6-12. Le rendement de détection lié au mini-tube « aller » apparaît inférieur à celui lié au « retour », ce qui s'explique par la proximité de ce dernier avec la diode HPGe. Il est à noter également que la tuyauterie « retour » représente un écran partiel pour le circuit « aller ». Le rendement total lié aux deux contributions apparaît plus proche du rendement lié au circuit « aller » puisque la contribution de ce dernier est plus importante en raison d'un volume comptant pour environ 83% du volume total des deux circuits.



**Figure 6-12 : Rendement de détection pour le circuit « aller » (vert), « retour » (bleu) et total (rouge), incertitudes à 1 $\sigma$  en pointillés**

L'écart-type  $\sigma_r$  associée aux différents rendements est issue de la propagation des incertitudes où  $\sigma_s$  est l'écart-type (erreur aléatoire) liée à la convergence statistique du calcul Monte-Carlo,  $\sigma_e$  l'écart-type (erreur systématique) lié au modèle numérique de la diode et  $\sigma_m$  l'écart-type (erreur systématique) lié aux incertitudes géométriques de la modélisation du poste de mesure :

$$\sigma_r = \sqrt{\sigma_s^2 + \sigma_e^2 + \sigma_m^2} \quad (7.2)$$

L'écart type  $\sigma_m$  lié aux incertitudes géométriques est déterminé à partir des incertitudes de mesure sur la distance canalisation-détecteur et sur le diamètre d'ouverture de la couronne de plomb dans laquelle est positionnée la tête du détecteur. La première incertitude  $\Delta d$  est estimée à  $\pm 4$  mm et la seconde,  $\Delta o$ , est estimée à  $\pm 1$  mm. Les écarts type associés sont définis selon une hypothèse de loi uniforme :

$$\begin{aligned} \sigma_d &= \frac{\Delta d}{\sqrt{3}} \\ \sigma_o &= \frac{\Delta o}{\sqrt{3}} \end{aligned} \quad (7.3)$$

Les écarts type relatifs aux rendements de détection issus des incertitudes géométriques  $\sigma(\varepsilon_d)$  et  $\sigma(\varepsilon_o)$  sont définis à partir des rendements simulés  $\varepsilon_{d-\sigma_d}$ ,  $\varepsilon_{d+\sigma_d}$ ,  $\varepsilon_{o-\sigma_o}$  et  $\varepsilon_{o+\sigma_o}$  selon une hypothèse de loi uniforme des valeurs entre les deux bornes :

$$\begin{aligned} \sigma(\varepsilon_d) &= \frac{\varepsilon_{d-\sigma_d} - \varepsilon_{d+\sigma_d}}{2\sqrt{3}} \\ \sigma(\varepsilon_o) &= \frac{\varepsilon_{o+\sigma_o} - \varepsilon_{o-\sigma_o}}{2\sqrt{3}} \end{aligned} \quad (7.4)$$

L'écart type  $\sigma_m$  est alors estimé selon l'équation (6.5) :

$$\sigma_m = \sqrt{\sigma(\varepsilon_d)^2 + \sigma(\varepsilon_o)^2} \quad (7.5)$$

#### 6.4.3.3 Activités volumiques

Les activités volumiques au point de mesure sont ensuite déterminées selon l'équation (6.3).

$$A_v = \frac{S}{I\varepsilon V} \quad (7.6)$$

avec  $S$  le taux de comptage dans le pic d'absorption totale,  $I$  l'intensité d'émission du rayonnement gamma,  $\varepsilon$  le rendement de détection à l'énergie considérée et  $V$  le volume de circuit modélisé. Dans ce chapitre, les évolutions temporelles de  $S$  et de  $A_v$  illustrées sont issues d'un traitement SINBAD 2D. La Figure 6-15, plus amplement détaillée dans la section suivante, illustre l'évolution de l'activité volumique de l'oxygène 19 et du manganèse 56, produits d'activation majoritaires, au point de mesure lors d'une irradiation sans perte d'étanchéité. La concordance des activités volumiques calculées à partir de différents pics d'absorption totale d'un même radioélément valide les rendements de détection précédemment calculés.

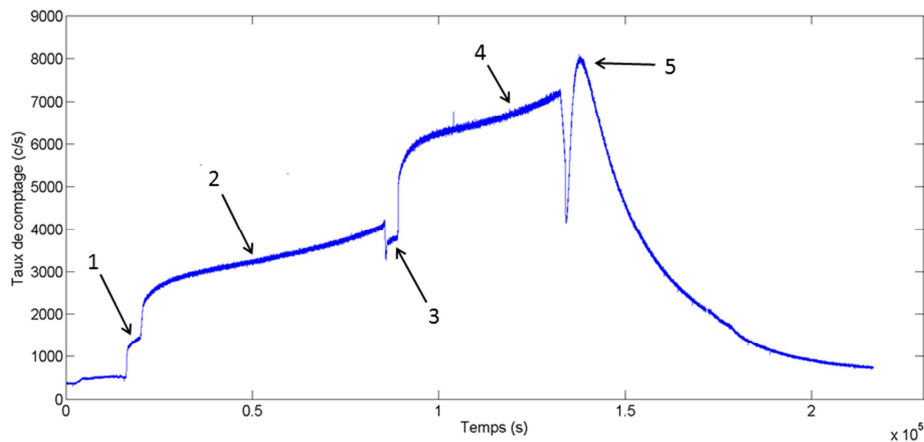
## 6.5 Les campagnes d'essais

Le poste de spectrométrie gamma ADONIS a été installé et a permis de suivre toutes les irradiations sur la boucle ISABELLE 1 durant cette thèse. Au final, deux pertes d'étanchéité correspondant à des ruptures de gaine de différents ampleurs ont pu être observées. La première s'est produite lors d'une rampe standard, la seconde lors de la rampe de forte puissance où le relâchement des produits de fission a été particulièrement intense. Cette seconde rupture de gaine fait ici l'objet d'une attention particulière au vu des taux de comptage mesurés par ADONIS.

### 6.5.1 Rampe de puissance standard sans perte d'étanchéité

Cette irradiation illustre une rampe de puissance standard ne conduisant pas à la rupture de gaine. La Figure 6-13 indique le suivi du taux de comptage total tout au long de l'irradiation dans lequel se retrouvent les différentes phases caractéristiques d'un essai standard :

- 1 : le pré-palier,
- 2 : le palier de conditionnement,
- 3 : le passage vers le palier haut précédé d'une légère diminution du taux de comptage due à l'apport d'eau neuve dans la boucle, d'où une légère dilution,
- 4 : le palier haut,
- 5 : la fin du palier haut et l'arrêt de l'expérience (recul de la boucle) s'accompagne d'un rebond lié à une modification des conditions thermohydrauliques de la boucle ISABELLE 1. Ce rebond est plus amplement discuté par la suite via le comportement du manganèse 56.



**Figure 6-13 : Taux de comptage total en fonction du temps**

La Figure 6-14 illustre le spectre gamma enregistré via ADONIS lors de l'irradiation et la détection des pics suite à l'analyse SINBAD. Malgré la conservation de l'étanchéité de la gaine, ce spectre apparaît très dense avec plus de 400 pics détectés. L'analyse de ces derniers permet alors de déterminer la présence de très nombreux radioéléments parmi lesquels des produits d'activation du caloporteur ou des structures de la boucle ainsi qu'un large éventail de produits de fission. Le Tableau 6-2 résume les différents radionucléides détectés. Les deux produits d'activation majoritaires dans le spectre sont l'oxygène 19 et le manganèse 56 :

- L'oxygène 19 est un traceur idéal de la puissance de la boucle puisque celle-ci est directement reliée au flux de neutrons et donc à la quantité d'atomes d'oxygène 18 activés. Contrairement aux autres produits d'activation, sa courte période (27 s) permet d'atteindre rapidement l'équilibre et donc de suivre les cinétiques rapides de variation de puissance (voir Figure 6-15).
- Le manganèse 56 est le second produit d'activation en termes d'abondance. L'évolution de sa signature spectrale est beaucoup plus lente en raison d'un temps de demi-vie de 2,6 h. La singularité de la cinétique liée à son taux de comptage est à noter avec une importante augmentation de ce dernier à la fin du palier haut responsable du rebond noté 5 sur la Figure 6-13. Cet évènement correspond à une modification des conditions thermohydrauliques dans la boucle avec une diminution de la température (arrêt de la canne chauffante) et une dépressurisation de celle-ci. Il apparaît donc que ces modifications entraînent une remise en circulation importante du manganèse 56 préalablement fixé dans la boucle (voir Figure 6-15). L'évolution liée au pic à 846,8 keV n'est pas illustrée sur cette figure en raison d'une interférence avec le pic de 847 keV de l'iode 134.

Nous pouvons également noter l'absence de détection d'azote 16 au niveau du poste de mesure. Celle-ci peut s'expliquer par une période (7 s) très courte devant le temps de transit jusqu'au poste de mesure (65 s) et par un taux d'interaction faible dans le cristal HPGe en raison de l'émission à très haute énergie (6129 keV).

La présence de nombreux produits de fission malgré l'absence de perte d'étanchéité est à attribuer à la pollution résiduelle de la boucle et du crayon combustible testé en matière fissile. Le nombre de fissions étant directement relié à la puissance de la boucle, il est alors également possible de suivre l'évolution cette puissance avec la cinétique d'un produit de fission de période courte tel que le xénon 139 ( $T_{1/2} = 40$  s) (voir Figure 6-16).

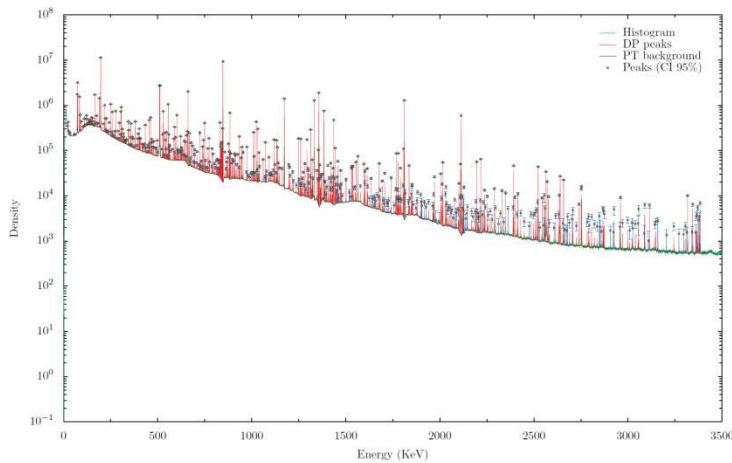


Figure 6-14 : Spectre en énergie de l'irradiation complète

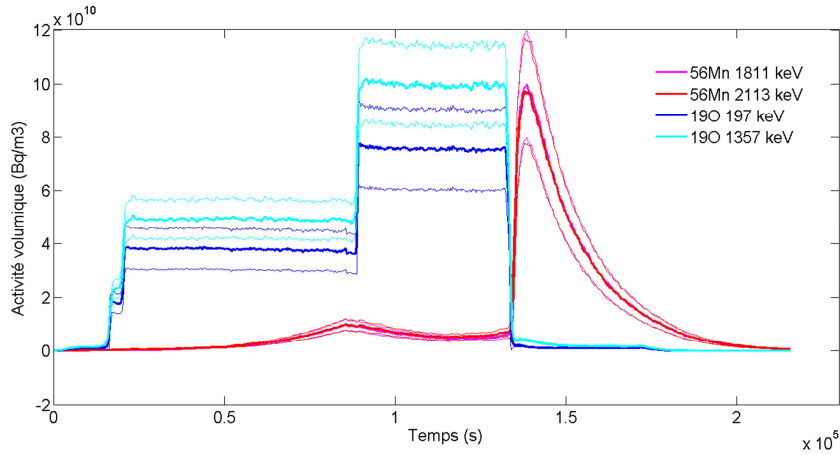
Nature	Radionucléides	T <sub>1/2</sub>	Principales énergies d'émission (keV)
Activation de l'eau : $^{18}\text{O}(n,\gamma)^{19}\text{O}$	$^{19}\text{O}$	27 s	197,1 (96%) ; 1356,8 (50%)
Activation des alliages en acier (corrosion) : $^{23}\text{Na}(n,\gamma)^{24}\text{Na}$	$^{24}\text{Na}$	15 h	1368,6 (100%) ; 2754 (50%)
Activation impuretés de l'eau : $^{40}\text{Ar}(n,\gamma)^{41}\text{Ar}$	$^{41}\text{Ar}$	1,8 h	1293,6 (99%)
Activation des alliages en acier (corrosion) : $^{55}\text{Mn}(n,\gamma)^{56}\text{Mn}$	$^{56}\text{Mn}$	2,6 h	846,8 (99%) ; 1810,7 (27%)
Activation des alliages en acier (corrosion) : $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$	$^{60}\text{Co}$	5,3 a	1332,5 (100%) ; 1173,2 (100%)
Produits de fission	$^{85\text{m}}\text{Kr}$	4,5 h	151,2 (75%) ; 304,9 (14%)
	$^{87}\text{Br}$	56 s	1419,7 (22%)
	$^{87}\text{Kr}$	1,3 h	402,6 (50%)
	$^{88}\text{Kr}$	2,8 h	2392,1 (35%) ; 196,3 (26%)
	$^{88}\text{Rb}$	17,8 min	1836,1 (22%) ; 898 (15%)
	$^{89}\text{Kr}$	3,2 min	221 (20%) ; 586 (17%)
	$^{89}\text{Rb}$	15,2 min	1031,9 (63%) ; 1248,1 (46%)
	$^{90}\text{Kr}$	32 s	1118,7 (39%) ; 121,8 (35%)
	$^{90}\text{Rb}$	2,7 min	831,7 (40%) ; 1060,7 (10%)
	$^{90\text{m}}\text{Rb}$	4,3 min	831,7 (94%) ; 1375,4 (17%)
	$^{91}\text{Rb}$	58 s	2564,2 (13%)
	$^{91}\text{Sr}$	9,7 h	555,6 (62%) ; 1024,3 (34%)



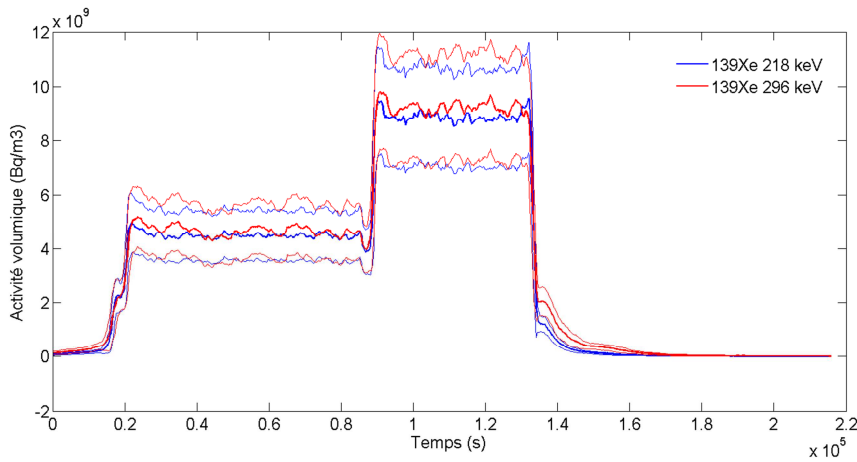
Chapitre 6 - Suivi de ruptures de gaines sur la boucle ISABELLE 1 par spectrométrie gamma hauts taux de comptage

Produits de fission	<sup>99</sup> Mo – <sup>99m</sup> Tc	2,7 j – 6 h	140,5 (90%) ; 739,5 (12%)
	<sup>101</sup> Mo	14,6 min	590,1 (20%) ; 191,9 (18%)
	<sup>104</sup> Tc	18,3 min	358 (89%) ; 530,5 (16%)
	<sup>131</sup> I	8 j	364,5 (81%) ; 637 (7%)
	<sup>132</sup> I	2,3 h	667,7 (99%) ; 772,6 (76%)
	<sup>133</sup> I	20,9 h	529,9 (86%)
	<sup>133</sup> Te	12,5 min	312,1 (62%) ; 407,6 (27%)
	<sup>133m</sup> Te	55,4 min	912,7 (55%) ; 647,5 (20%)
	<sup>134</sup> I	52,5 min	847 (95%) ; 884,1 (65%)
	<sup>134</sup> Te	41,8 min	767,2 (30%) ; 210,5 (22%)
	<sup>135</sup> I	6,6 h	1260,4(29%) ; 1131,5 (23%)
	<sup>135</sup> Xe	9,1 h	249,8 (90%)
	<sup>135m</sup> Xe	15,3 min	526,6 (81%)
	<sup>136</sup> I	83 s	1313 (67%) ; 1321,1 (25%)
	<sup>137</sup> Cs	30 a	661,7 (85%)
	<sup>137</sup> Xe	3,8 min	455,5 (31%)
	<sup>138</sup> Cs	33,4 min	1435,9 (76%) ; 462,8 (31%)
	<sup>138</sup> Xe	14,1 min	258,4 (32%) ; 434,6 (20%)
	<sup>139</sup> Ba	1,4 h	165,9 (24%) ;
	<sup>139</sup> Xe	40 s	218,6 (56%) ; 296,5 (22%)
	<sup>140</sup> Cs	1,1 min	602,4 (53%)
	<sup>140</sup> La	1,7 h	1596,2 (95%) ; 487 (46%)
	<sup>140</sup> Xe	14 s	805,5 (20%) ; 1413,7 (12%)
	<sup>141</sup> Ba	18,3 min	190,3 (46%) ; 304,2 (25%)
	<sup>142</sup> Ba	10,6 min	255,3 (21%) ; 1204,3 (14%)
	<sup>143</sup> Ce	33 h	293,3 (43%)
	<sup>187</sup> W	23,7 h	685,7 (27%) ; 479,5 (22%)
	<sup>239</sup> Np	2,4 j	106,1 (26%) ; 103,7 (21%)

**Tableau 6-2 : Radionucléides identifiés dans le spectre gamma**



**Figure 6-15 : Activités volumiques de l’oxygène 19 et du manganèse 56 au point de mesure (en gras) et incertitudes associées à  $2\sigma$  (en fin)**



**Figure 6-16 : Activités volumiques xénon 139 au point de mesure (en gras) et incertitudes associées à  $2\sigma$  (en fin)**

Au vu des temps de demi-vie des radioéléments illustrés dans les Figure 6-15 et Figure 6-16, l’activité volumique du manganèse 56 est déterminée à partir du rendement de détection issu des deux circuits reposant sur une concentration identique dans ceux-ci. En effet, avec sa demi-vie de 2,6 heures, 98% des noyaux de manganèse 56 transitant par le circuit retour devant la diode transitent également par le circuit aller au niveau du poste de mesure. Concernant l’oxygène 19 et le xénon 139, le rendement de détection associé au circuit retour seul est pris en compte puisqu’avec des demi-vies respectivement de 27 et 40 secondes, seul 0,05% et 0,6% des radionucléides considérés parviennent au niveau du circuit aller devant la diode.

### 6.5.2 La rampe de puissance standard avec perte d’étanchéité

La rampe étudiée ici est une rampe de puissance standard ayant engendré une rupture de gaine. Le déroulement du début de l’irradiation reste similaire à celui décrit dans l’étude de la rampe sans perte d’étanchéité et ne sera donc pas plus amplement détaillé ici. La Figure 6-17 illustre le

suivi du taux de comptage total enregistré par ADONIS durant l'irradiation et au-delà tandis que les figures Figure 6-18 et Figure 6-19 se focalisent sur les premiers instants après la rupture de gaine. Les premiers signes de perte d'étanchéité apparaissent au niveau du poste de mesure environ 160 secondes après avoir atteint la puissance correspondant au palier haut avec un taux de comptage passant de 5000 cps à environ 11 000 cps en 15 secondes. Un second gain d'activité, plus intense que le premier, est enregistré 7 minutes et 30 secondes plus tard avec un taux de comptage passant de 19 000 cps à  $6,57 \cdot 10^5$  cps en 54 secondes.

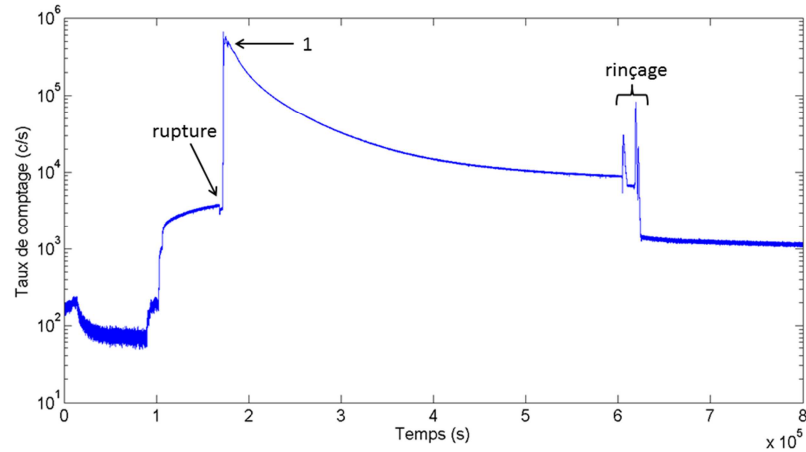


Figure 6-17 : Taux de comptage total en fonction du temps. Le pic identifié « 1 » fait l'objet d'un zoom en Figure 6-18.

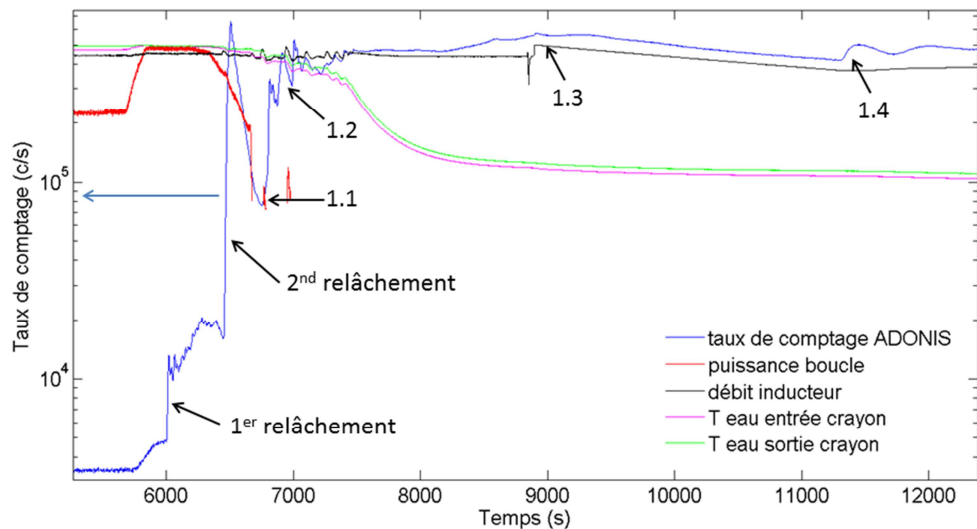
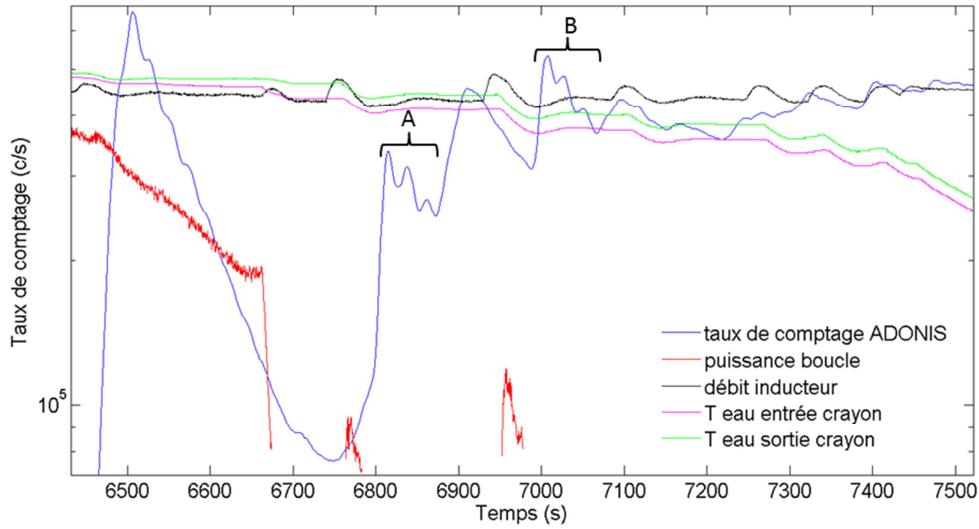


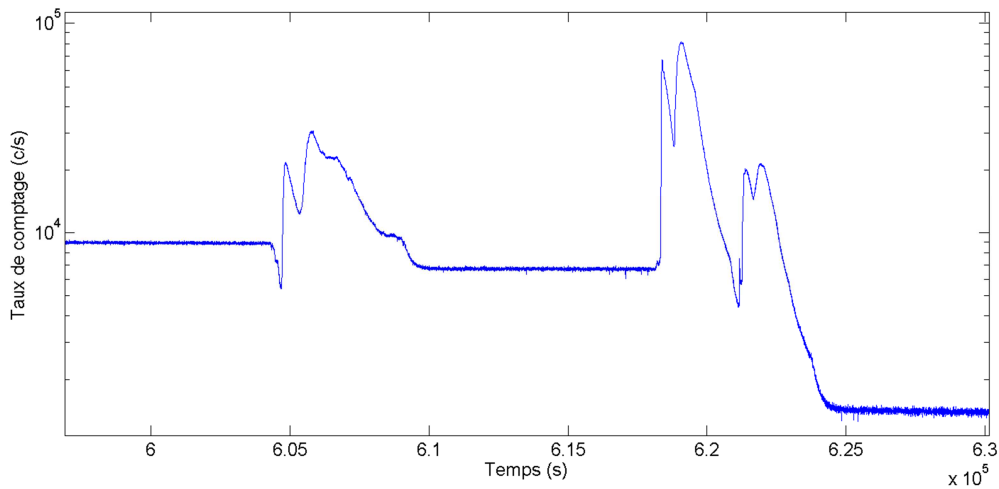
Figure 6-18 : Taux de comptage total en fonction du temps (zoom sur l'instant de la rupture)



**Figure 6-19 : Taux de comptage total en fonction du temps (zoom sur la zone « 1.2 »)**

Les séquences « A » et « B », dans lesquelles une série de trois rebonds de période 23 secondes se distingue, sont identifiées sur la Figure 6-19. Cette période est à attribuer au temps nécessaire à l'eau pour boucler autour du crayon combustible au sein du porte échantillon. L'étude des cinétiques liées aux différents produits de fission permet d'émettre des hypothèses concernant l'origine des variations des taux de comptage observés. Ces cinétiques sont abordées plus loin dans cette section.

Afin de déconnecter la boucle, un certain nombre de rinçages sont nécessaires pour faire chuter la radioactivité de l'eau contenue dans cette dernière sous des seuils prédéfinis. La Figure 6-20 illustre l'évolution du taux de comptage total lors d'une série de trois rinçages consécutifs. Les différents rebonds au sein de ces trois séquences sont à attribuer à des variations brutales de débit et de pression au sein de la boucle.



**Figure 6-20 : Taux de comptage total en fonction du temps (zoom sur les rinçages)**

Une analyse SINBAD du spectre gamma enregistré sur la plage temporelle correspondant à la Figure 6-18 (Figure 6-21) permet d'identifier les radioéléments ayant transité jusqu'au poste de mesure après la rupture de gaine. Si les produits d'activation les plus intenses restent détectés ( $^{19}\text{O}$  et  $^{56}\text{Mn}$ ), la grande majorité des radionucléides observés sont les gaz rares de fission et les produits de fission volatiles comme l'illustre le Tableau 6-3.

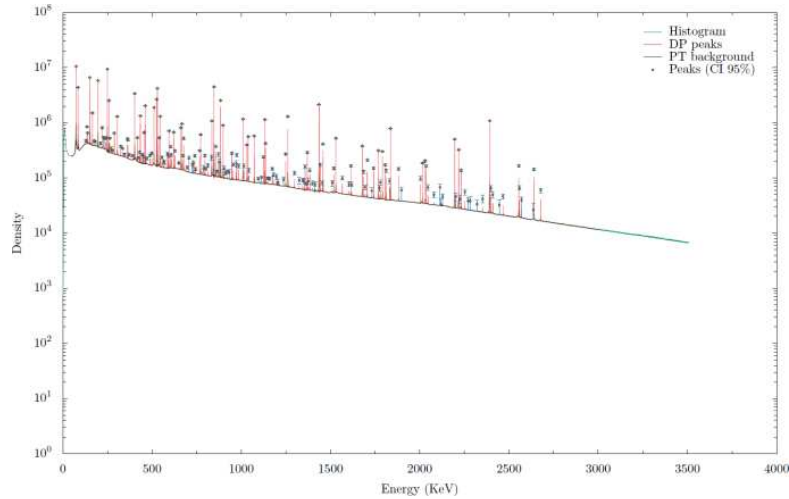


Figure 6-21 : Spectre gamma enregistré sur la plage temporelle relative à la Figure 6-18

Nature	Radionucléides	T <sub>1/2</sub>	Principales énergies d'émission (keV)
Activation de l'eau : $^{18}\text{O}(n,\gamma)^{19}\text{O}$	$^{19}\text{O}$	27 s	197,1 (96%) ; 1356,8 (50%)
Activation des alliages en acier (corrosion) : $^{55}\text{Mn}(n,\gamma)^{56}\text{Mn}$	$^{56}\text{Mn}$	2,6 h	846,8 (99%) ; 1810,7 (27%)
Produits de fission	$^{85\text{m}}\text{Kr}$	4,5 h	151,2 (75%) ; 304,9 (14%)
	$^{87}\text{Kr}$	1,3 h	402,6 (50%)
	$^{88}\text{Kr}$	2,8 h	2392,1 (35%) ; 196,3 (26%)
	$^{88}\text{Rb}$	17,8 min	1836,1 (22%) ; 898 (15%)
	$^{89}\text{Kr}$	3,2 min	221 (20%) ; 586 (17%)
	$^{89}\text{Rb}$	15,2 min	1031,9 (63%) ; 1248,1 (46%)
	$^{90}\text{Kr}$	32 s	1118,7 (39%) ; 121,8 (35%)
	$^{91}\text{Sr}$	9,7 h	555,6 (62%) ; 1024,3 (34%)
	$^{99}\text{Mo}$	2,7 j	140,5 (90%) ; 739,5 (12%)
	$^{131}\text{I}$	8 j	364,5 (81%) ; 637 (7%)
	$^{132}\text{I}$	2,3 h	667,7 (99%) ; 772,6 (76%)

Produits de fission	<sup>133</sup> I	20,9 h	529,9 (86%)
	<sup>134</sup> I	52,5 min	847 (95%) ; 884,1 (65%)
	<sup>134</sup> Cs	2,1 a	604,7 (98%) ; 795,9 (85%)
	<sup>134</sup> Te	41,8 min	767,2 (30%) ; 210,5 (22%)
	<sup>135</sup> I	6,6 h	1260,4(29%) ; 1131,5 (23%)
	<sup>135</sup> Xe	9,1 h	249,8 (90%)
	<sup>135m</sup> Xe	15,3 min	526,6 (81%)
	<sup>137</sup> Cs	30 a	661,7 (85%)
	<sup>137</sup> Xe	3,8 min	455,5 (31%)
	<sup>138</sup> Cs	33,4 min	1435,9 (76%) ; 462,8 (31%)
	<sup>138</sup> Xe	14,1 min	218,6 (56%) ; 296,5 (22%)
	<sup>139</sup> Xe	40 s	218,6 (56%) ; 296,5 (22%)

**Tableau 6-3 : Radionucléides identifiés dans le spectre gamma lors de la rupture de gaine. L'identification est réalisée sur la pente temporelle relative à la Figure 6-18.**

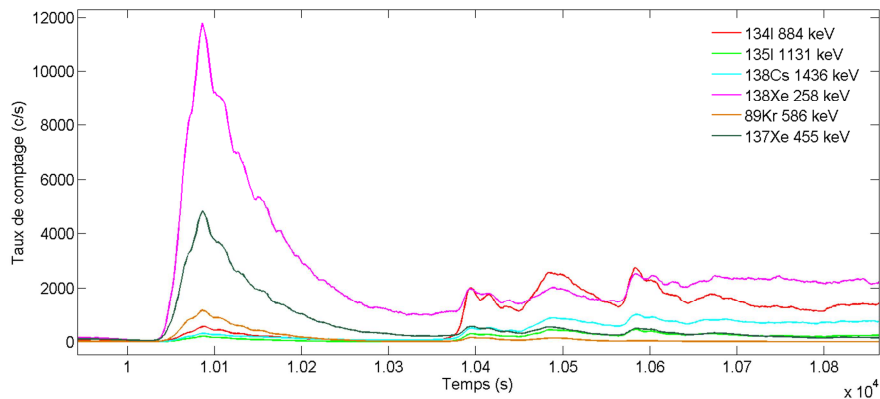
Les Figure 6-22 et Figure 6-23 illustrent le suivi temporel des taux de comptage dans les pics d'absorption totale pour différents radionucléides représentatifs des produits de fission gazeux (<sup>89</sup>Kr, <sup>137</sup>Xe, <sup>138</sup>Xe) et volatiles (<sup>134</sup>I, <sup>135</sup>I, <sup>138</sup>Cs). Nous préférons ici discuter de taux de comptage plutôt que d'activités volumiques au point de mesure en raison de l'inhomogénéité des concentrations circulant dans les deux circuits liée aux nombreux relâchements sur la période étudiée. En effet, le rendement de détection du poste de mesure précédemment calculé repose sur l'hypothèse d'une concentration constante dans les deux mini-tubes à la période de décroissance prêt. Il apparaît que les deux premiers relâchements indiqués « 1<sup>er</sup> relâchement » et « 2<sup>nd</sup> relâchement » sur la Figure 6-18 correspondent essentiellement à des rejets de produits de fission gazeux tandis que la proportion des taux de comptage liés aux produits de fission volatiles augmente par la suite. Ces observations apparaissent semblables à celles présentées dans les travaux [74]. Plusieurs hypothèses peuvent être avancées :

- 1) Une perte d'étanchéité apparaît lors du palier haut, entraînant la dépressurisation lente des vases d'expansion avec le rejet des gaz de fission accumulés dans ces derniers.
- 2) Un deuxième relâchement très intense apparaît lors du recul de la boucle et de la diminution de sa puissance. Ce relâchement coïncide avec la modification des conditions thermohydrauliques de la boucle. Deux scénarios peuvent être envisagés :

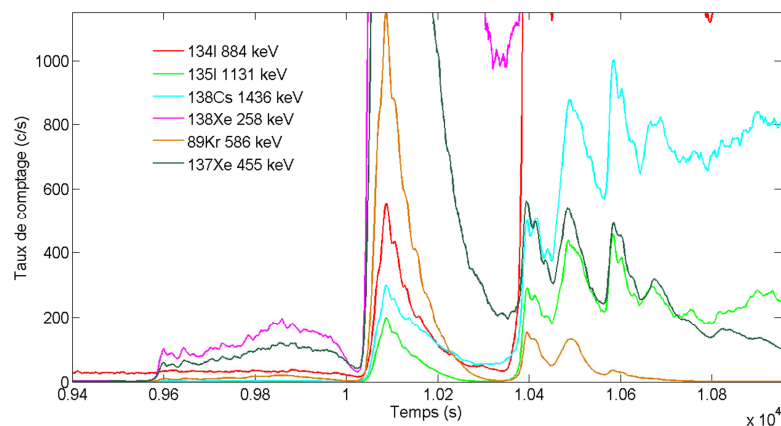
- Une augmentation du débit de sortie des produits de fission sans modification de la taille de la rupture.
- Une dégradation de la brèche entraînant un relâchement plus important.

Comme lors du premier relâchement, la contribution des gaz rares de fission domine. Ce rejet peut être attribué à un dégonflement majeur des vases d'expansion.

- 3) Au-delà du second relâchement, les pics de taux de comptage (« 1.1 », « 1.2 », « 1.3 » et « 1.4 » sur la Figure 6-18) sont principalement imputables aux produits de fission volatiles. Ces derniers coïncident également avec des modifications des conditions thermohydrauliques de la boucle (Figure 6-19). Ce rejet de volatiles semble caractéristique d'une pénétration d'eau à l'intérieur du crayon [74]. Une hypothèse est la rétractation du combustible suite à la baisse de température de ce dernier entraînant un élargissement de l'espace gaine-combustible. La pénétration d'eau dans le crayon est alors facilitée, cette quantité d'eau étant par la suite vaporisée au contact du combustible.



**Figure 6-22 : Taux de comptage enregistré pour différents produits de fission gazeux et volatiles**



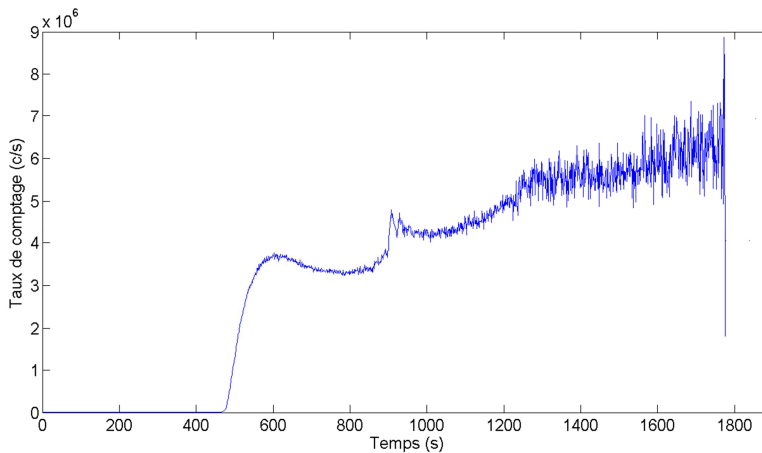
**Figure 6-23 : Taux de comptage enregistré pour différents produits de fission gazeux et volatiles (zoom sur les faibles taux de comptage)**

### 6.5.3 La rampe de forte puissance avec perte d'étanchéité

Lors de cette rampe de forte puissance avec rupture de gaine, le relâchement intense des produits de fission a pu être observé. La Figure 6-24 illustre le suivi du taux de comptage total au moment de la rupture de gaine intervenue lors de l'augmentation de puissance vers le palier haut. L'augmentation de ce taux de comptage est brutale en passant de  $3,0 \cdot 10^3$  cps à  $3,6 \cdot 10^6$  cps en deux minutes. Une seconde augmentation brutale est observée environ 250 secondes après le premier pic. Le taux de comptage passe alors de  $3,6 \cdot 10^6$  cps à  $4,8 \cdot 10^6$  cps en 11 secondes. Plusieurs hypothèses peuvent être avancées pour expliquer ce regain d'activité :

- un élargissement de la brèche déjà existante,
- une augmentation du relâchement pour une taille de brèche constante,
- l'apparition d'une autre brèche sur le crayon.

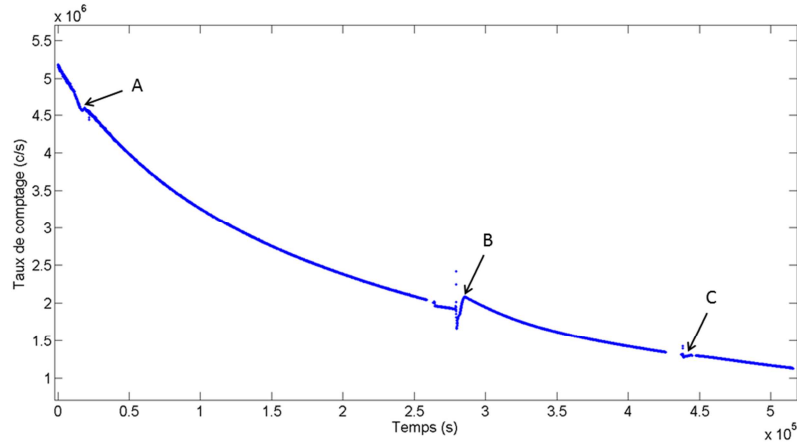
Par la suite, l'augmentation du taux de comptage suit une croissance lente avant de parvenir aux limites de la chaîne ADONIS avec une saturation à environ  $6 \cdot 10^6$  cps. En effet, si très peu d'évènements enregistrés suffisent à estimer le taux de comptage total en raison de l'estimation fine du temps actif de la chaîne ADONIS, plus aucun évènement n'est enregistré au-delà de cette limite en raison d'un temps mort de la chaîne de mesure de 100%.



**Figure 6-24 : Evolution du taux de comptage total enregistré dans les premiers instants après la rupture de gaine**

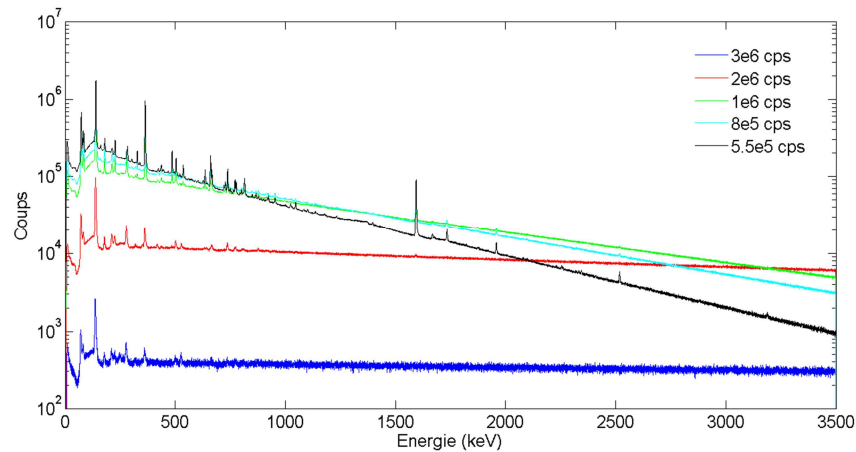
Le suivi du taux de comptage total est rendu de nouveau possible environ 22 heures plus tard lorsque l'activité de la boucle a suffisamment diminué, tout en restant extrêmement élevé avec plusieurs millions de coups par secondes, comme illustré sur la Figure 6-25. L'irradiation est alors terminée et la décroissance de l'activité de la boucle est observée. Les rebonds notés « A », « B » et « C » font suite à l'introduction d'eau neuve dans la boucle.





**Figure 6-25 : Taux de comptage total suite à la récupération de la chaîne ADONIS**

Si le suivi du taux de comptage total reste possible avec très peu d'évènements enregistrés jusqu'à environ  $6 \cdot 10^6$  cps, la construction de spectres et donc l'identification de radioéléments nécessite un nombre d'évènements enregistrés conséquent. La construction de spectres jusqu'à  $6 \cdot 10^6$  cps n'est par conséquent pas possible. La Figure 6-26 indique les spectres enregistrés en fonction du taux de comptage lors de la décroissance de l'activité de la boucle. La diminution des évènements enregistrés, la dégradation de la résolution ainsi que l'augmentation de l'empilement sont clairement constatés avec l'augmentation du taux de comptage.



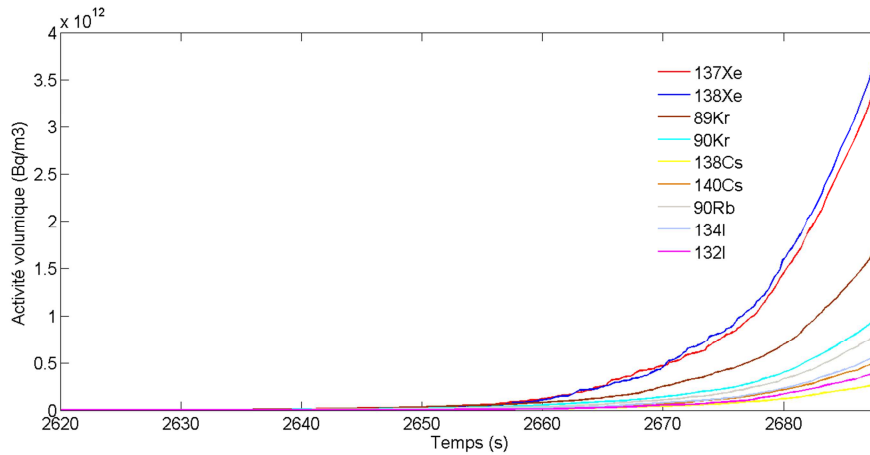
**Figure 6-26 : Spectres acquis en fonction du taux de comptage**

Cette dégradation étant progressive avec le taux de comptage, il n'est pas aisé de déterminer une limite absolue à partir de laquelle l'exploitation des spectres est rendue impossible. Néanmoins, au vu des spectres observés, de la cinétique rapide du relâchement et donc de la résolution temporelle fine souhaitée, on estimera qu'il reste possible d'étudier les spectres gamma jusqu'à un taux de comptage entrant limite de  $6 \cdot 10^5$  cps, correspondant alors à une trentaine de secondes après les premiers signes de la rupture de gaine au niveau du poste de mesure. Le Tableau 6-4 illustre les radioéléments identifiés durant les premiers instants de la rupture de gaine.

Nature	Radionucléides	T <sub>1/2</sub>	Principales énergies d'émission (keV)
Produits de fission	<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2 (75%) ; 304,9 (14%)
	<sup>87</sup> Kr	1,3 h	1419,7 (22%)
	<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1 (35%) ; 196,3 (26%)
	<sup>89</sup> Kr	3,2 min	221 (20%) ; 586 (17%)
	<sup>89</sup> Rb	15,2 min	1031,9 (63%) ; 1248,1 (46%)
	<sup>90</sup> Kr	32 s	1118,7 (39%) ; 121,8 (35%)
	<sup>90</sup> Rb	2,7 min	831,7 (40%) ; 1060,7 (10%)
	<sup>131</sup> I	8 j	364,5 (81%) ; 637 (7%)
	<sup>132</sup> I	2,3 h	667,7 (99%) ; 772,6 (76%)
	<sup>133</sup> Xe	5,2 j	81 (37%)
	<sup>133</sup> I	20,9 h	529,9 (86%)
	<sup>134</sup> I	52,5 min	847 (95%) ; 884,1 (65%)
	<sup>135</sup> I	6,6 h	1260,4(29%) ; 1131,5 (23%)
	<sup>135</sup> Xe	9,1 h	249,8 (90%)
	<sup>135m</sup> Xe	15,3 min	526,6 (81%)
	<sup>137</sup> Xe	3,8 min	455,5 (31%)
	<sup>138</sup> Cs	33,4 min	1435,9 (76%) ; 462,8 (31%)
	<sup>138</sup> Xe	14,1 min	258,4 (32%) ; 434,6 (20%)
	<sup>139</sup> Xe	40 s	218,6 (56%) ; 296,5 (22%)
	<sup>140</sup> Cs	1,1 min	602,4 (53%)

**Tableau 6-4 : Radioéléments identifiés durant les trente premières secondes de la rupture de gaine**

Dans ces premiers instants, seuls les produits de fission gazeux et volatiles sont mesurés. La Figure 6-27 illustre leur activité volumique au point de mesure dans les premiers instants après le relâchement. Ces activités sont déterminées en utilisant le rendement de détection du circuit retour uniquement. En effet, les produits de fission issus de l'ouverture de la gaine n'ont pas encore eu le temps de parvenir au niveau du circuit aller du poste de mesure puisque la période étudiée n'est que de 30 secondes. Comme pour la perte d'étanchéité sur la rampe standard précédemment étudiée, le premier relâchement est principalement constitué de gaz rares de fission dû à une dépressurisation violente du crayon.



**Figure 6-27 : Activités volumiques des produits de fission gazeux et volatiles dans les premiers instants de la rupture de gaine**

## 6.6 Conclusion

Les dernières irradiations de crayons combustible dans la boucle ISABELLE 1 lors des derniers mois de fonctionnement du réacteur OSIRIS ont représenté une opportunité afin de tester la chaîne de spectrométrie gamma ADONIS pour le suivi de rupture de gaine. Le poste de mesure, installé pendant près de deux ans sur ISABELLE 1 a permis de suivre de nombreuses irradiations et d'acquérir un nombre très important de données expérimentales de grande valeur scientifique. La position de ce poste de mesure sur la boucle, la plus amont possible après le crayon combustible, a permis de confronter la chaîne ADONIS aux conditions les plus pénalisantes possible en terme de taux de comptage et d'abondance isotopique.

Le suivi des différentes rampes de puissance standards n'ayant pas entraînés de perte d'étanchéité ont conduit à des taux de comptage modérés (jusqu'à 8000 cps en fin de palier haut dans l'exemple illustré dans ce chapitre). Le suivi de radioéléments de périodes courtes, rapidement à l'équilibre, est un bon traceur de la puissance linéique du crayon testé. L'oxygène 19, produit d'activation de l'eau de la boucle, représente le principal traceur par son abondance et sa demi-vie de 27 secondes. Même en l'absence de perte d'étanchéité, de nombreux produits de fission ont d'ores et déjà été identifiés en raison de la pollution résiduelle de la boucle et du crayon combustible. Tout comme l'oxygène 19, l'évolution des concentrations des produits de fission de demi-vie courte au sein de la boucle suit également la puissance de celle-ci. En effet, les quantités de produits de fission produites sont directement liées aux nombres de fissions et par conséquent à la distance entre la boucle et le cœur d'OSIRIS.

Parmi toutes les irradiations suivies, deux d'entre elles ont entraîné une rupture de gaine. La première intervient lors d'une rampe standard où la perte d'étanchéité du crayon n'était pas l'objectif visé par les équipes d'OSIRIS. Celle-ci a permis d'exploiter la chaîne ADONIS durant toute l'irradiation et jusqu'à des taux de comptage de l'ordre de  $6 \cdot 10^6$  cps. Cette rupture de

gaine se caractérise par une succession de rejets de produits de fission hors du crayon combustible. Les deux premiers rejets, dont le second très brutal, sont caractérisés majoritairement par un relâchement des gaz rares de fission sous pression dans le crayon. La proportion des produits de fission volatiles dans les rejets suivants augmente. Ces rejets coïncident avec des modifications thermohydrauliques au sein de la boucle et peuvent s'expliquer par la pénétration d'eau à l'intérieur du crayon. Sa vaporisation suite au contact avec le combustible entraînerait l'expulsion de produits de fission volatiles dans la boucle. Concernant la rampe de forte puissance, le crayon combustible testé a fait l'objet d'une irradiation dans laquelle la puissance linéique a été portée bien au-delà des limites habituelles dans le but d'assurer la rupture de gaine. Cette dernière a permis d'exploiter la chaîne ADONIS jusqu'à ses limites technologiques avec un taux de comptage total culminant jusqu'à presque  $6 \cdot 10^6$  cps avant saturation. Le suivi des différents radioéléments relâchés dans la boucle est effectué durant une trentaine de secondes avec là encore des gaz rares de fission majoritaires dans les débuts du relâchement. Malgré les limites atteintes, la justesse métrologique des événements enregistrés est conservée. Les nombreuses semaines d'acquisition représente donc des données relativement rares et par conséquent précieuses.

# 7 CONCLUSION GENERALE

Les réacteurs de quatrième génération d'ores et déjà à l'étude au sein du Forum International Génération IV représentent des solutions d'avenir à l'heure du réchauffement climatique et de la diminution des ressources en énergie fossile. Cette nouvelle génération, également prometteuse pour la pérennisation du combustible, la gestion des déchets, la sûreté et la non-prolifération, a été dans un premier temps décrite dans ce manuscrit au travers des six filières explorées. Nous nous sommes plus particulièrement intéressés dans ces travaux à la filière des RNR-Na, filière présentant une certaine maturité dans laquelle la France s'est engagée avec la volonté de construire le prototype de démonstrateur industriel ASTRID. Ces travaux de thèse ciblent plus particulièrement la problématique de détection de ruptures de gaines et le développement de l'instrumentation dédiée, le fonctionnement en cœur propre étant une exigence forte de la filière.

Un état de l'art de l'instrumentation pour la détection de ruptures de gaines, existant à l'heure actuelle et notamment déployée sur les réacteurs Phénix et Superphénix, est présenté et ses limitations sont constatées. Les systèmes de détection et de localisation des ruptures de gaines gaz (DRG gaz et LRG gaz) permettent la mesure, totale ou spectrométrique, des gaz rares de fission relâchés, suite à la perte d'étanchéité, dans le ciel de pile ou par dégazage du sodium primaire. Seuls les produits de fission gazeux sont concernés par cette détection, basée sur l'utilisation de lignes à retard dédiées à la suppression des composantes liées au néon 23 et à l'argon 41, différant par conséquent l'instant de la mesure. Les DRG et LRG sodium sont dédiées à la mesure des produits de fission émetteurs de neutrons différés (PFEND) relâchés lorsque la rupture évolue vers une phase ouverte. Cette détection effectuée via les blocs DND met en œuvre des compteurs  $^3\text{He}$ . Cette dernière reste principalement dédiée à une catégorie de produits de fission et seule une mesure globale apparaît possible. De plus, le retour d'expérience obtenu sur l'exploitation de ces blocs DND (*Delayed Neutron Detection*) montre une

perturbation du signal neutron utile par la production de photoneutrons au sein du polyéthylène modérateur. En conclusion, les limitations de cette instrumentation résident principalement dans le nombre restreint de produits de fission suivis (cf. Tableau 2-5 récapitulatif), ainsi que dans les délais nécessaires à la réalisation de la mesure. En se basant sur ce constat, deux axes de travail ont été définis dans le cadre de ces travaux de thèse.

Le premier axe concerne l'optimisation des blocs DND pour la détection de PFEND, afin de maximiser l'amplitude du signal neutron utile tout en diminuant la contribution parasite liée aux photoneutrons. Les premières simulations Monte-Carlo MCNPX confirment le retour d'expérience obtenu sur les précédentes installations de type RNR-Na, puisque l'intense activité de sodium 24 produit une quantité non négligeable de photoneutrons par réaction photonucléaire sur le deutérium présent dans le polyéthylène modérateur. La piste d'un poste de mesure n'utilisant pas de matériau hydrogéné est alors étudiée et le remplacement du polyéthylène par le graphite est proposé. En effet, ce dernier conserve un bon pouvoir modérateur, tout en présentant un seuil de réaction photonucléaire supérieur à 2,75 MeV, cette valeur correspondant à la principale raie gamma émise par le sodium 24. Les simulations MCNPX indiquent que l'utilisation de graphite comme modérateur permettrait ainsi d'atteindre un meilleur rapport signal sur bruit tout en supprimant la composante des photoneutrons. Une telle solution apparaît par conséquent prometteuse. Une conception d'un poste de mesure est proposée dans cette étude. Des essais ont également été menés dans le but de valider, en partie, les simulations MCNPX d'un poste de mesure neutron à compteur hélium 3 et utilisant du carbone comme modérateur.

Le second axe, technologiquement plus ambitieux, vise à enrichir le diagnostic de rupture de gaines par une détection plus large de produits de fission ne se limitant pas aux gaz rares de fission et aux halogènes précurseurs de neutrons retardés. L'amélioration de la rapidité du diagnostic constitue également un enjeu majeur. En tenant compte de ces objectifs, la piste d'une spectrométrie gamma exécutée directement sur le sodium primaire est explorée. Cette solution technologique n'apparaissait pas envisageable jusqu'à présent, en raison des très hauts taux de comptage liés à l'activité des produits d'activation du sodium. Néanmoins, les progrès récents de l'instrumentation nucléaire, et notamment le développement de la chaîne de spectrométrie gamma hauts taux de comptage ADONIS, permettent aujourd'hui de reconsidérer cette faisabilité. Une étude bibliographique sur la phénoménologie des ruptures de gaine, allant du comportement des produits de fission au sein du combustible jusqu'à leur relâchement dans le caloporteur en cas d'ouverture de la gaine, est menée afin de cibler les différents radioéléments d'intérêt pour notre étude. Les gaz rares de fission ainsi que les produits de fission volatiles apparaissent prépondérants dans les premiers instants suivant une rupture de gaine. Une étude Monte-Carlo MCNPX est ensuite réalisée dans le cadre de ces travaux, afin de tester la faisabilité d'une telle spectrométrie gamma. Celle-ci implémente la modélisation d'un

poste de mesure composé d'un détecteur HPGe en regard d'une capacité accueillant le sodium issu d'un prélèvement en sortie des assemblages. La réponse spectrale de la diode HPGe à l'importante activité des produits d'activation est simulée en intégrant les caractéristiques de la chaîne ADONIS. Les limites de détection associées aux principaux produits de fission d'intérêt, *i.e.* identifiés comme potentiellement présents dans les premiers instants d'une rupture de gaine, sont déterminées en tenant compte de la réponse spectrale due aux produits d'activation. Les activités minimales détectables au niveau du point de prélèvement, *i.e.* en sortie d'assemblages, sont alors calculées. Ces AMD sont comparées aux activités volumiques d'un modèle de relâchement de produits de fission actuellement développé par les équipes du CEA Cadarache. Les premières comparaisons aux relâchements issus d'une perte d'étanchéité de diamètre 10 µm au milieu de la colonne fissile d'une aiguille centrale du cœur d'ASTRID, rendant compte d'un dégonflement progressif des vases d'expansion, indiquent des activités volumiques en sortie d'assemblage en deçà des activités minimales détectables calculées. Cependant, il serait important dans la continuité de cette étude d'envisager d'autres scénarios de rupture de gaine avec notamment des ouvertures allant au-delà de 10 µm. En effet, si l'on considère un dégazage plus intense au niveau de la brèche, les activités volumiques de certains produits de fission en sortie d'assemblage, tels que le xénon 133 ou le xénon 135, deviennent compatibles avec les AMD calculées de l'ordre de  $10^{11}$  Bq.m<sup>-3</sup>. L'accord de ce relâchement plus intense avec une taille de brèche crédible sera à déterminer. Si la faisabilité d'une telle spectrométrie apparaît délicate, la poursuite de l'étude est nécessaire afin de statuer de manière définitive.

Les irradiations de crayons combustible réalisées sur la boucle ISABELLE 1 du réacteur OSIRIS sur la période 2014-2015 ont représenté une opportunité unique de tester la spectrométrie gamma hauts taux de comptage pour la détection de rupture de gaine. Un poste de mesure intégrant la chaîne ADONIS et un détecteur HPGe a donc été conçu puis installé sur cette boucle afin de suivre les potentiels relâchements de produits de fission suite à une ouverture des crayons irradiés. Son implantation la plus en amont possible par rapport au crayon combustible testé maximise les chances de hauts taux de comptage, afin d'exploiter entièrement les capacités de la chaîne ADONIS. Ces essais ont également permis de démontrer la nécessité d'outils adaptés au traitement de spectres complexes, dont certains directement développés dans le cadre de cette thèse. L'apport du code SINBAD par rapport aux méthodes conventionnelles pour l'analyse de spectres gamma complexes est notamment démontré au travers d'une étude. Trois irradiations sont plus particulièrement décrites dans ce document. Le suivi d'une irradiation sans perte d'étanchéité nous indique la présence de très nombreux produits de fission imputables à la pollution de la boucle et de la gaine en matière fissile. Il est alors possible de suivre l'évolution de la puissance de la boucle via le suivi temporel de produits de fission de demi-vie courte arrivant rapidement à l'équilibre. Les deux autres irradiations détaillées ici rendent compte toutes les deux d'une rupture de gaine. La première d'entre elle a permis

l'exploitation de la chaîne ADONIS durant toute la durée de l'irradiation avec un taux de comptage total incident culminant à  $6 \cdot 10^5$  cps. Cette rupture de gaine se caractérise par deux dégazages successifs du crayon combustible dont le deuxième présente une très forte intensité. Les produits de fission relâchés sont alors majoritairement les gaz rares de fission xénon et krypton. D'autres relargages, coïncidant avec des modifications thermohydrauliques de la boucle, sont par la suite constatés. Ces derniers, plus riches en produits de fission volatiles, peuvent s'expliquer par une pénétration d'eau à l'intérieur du crayon ouvert avant d'être rejetée. La seconde rupture de gaine s'est avérée d'une intensité difficilement prévisible avec un très fort relâchement de produits de fission. Le suivi du taux de comptage s'est avéré possible jusqu'à  $6 \cdot 10^6$  cps grâce au maintien de la métrologie du temps actif possible avec ADONIS et malgré le peu d'évènements enregistrés. La fonction de spectrométrie et le suivi des différents produits de fission ont pu être réalisés durant une trentaine de secondes après la rupture de gaine. Comme la précédente, celle-ci se caractérise par un premier relâchement dans le caloporteur dominé par les gaz rares de fission.

La chaîne de spectrométrie gamma ADONIS, couplée aux outils pour la déconvolution de spectres denses comme SINBAD et SINBAD 2D, aura donc permis de suivre les deux ruptures de gaines survenues sur la période 2014-2015 sur la boucle ISABELLE 1. Ces essais démontrent ainsi l'aptitude de la chaîne ADONIS et de son approche algorithmique pour cette application. Si ces derniers ont été réalisés en condition REP, la faisabilité d'une spectrométrie gamma sur le sodium primaire en RNR-Na se pose. Les premiers éléments détaillés dans ces travaux confirment, malgré les performances de la chaîne ADONIS, la perturbation occasionnée par l'importante activité des produits d'activation et plus particulièrement du sodium 24. Néanmoins, peu d'informations sur les activités relâchées dans le sodium dans les premiers instants d'une rupture sont disponibles, rendant difficile une comparaison avec les activités minimales détectables calculées. A l'avenir, d'autres scénarios de ruptures de gaine devront être envisagés via le modèle de relâchement en développement, notamment pour des brèches plus importantes et des relâchements plus brutaux. Des travaux doivent être engagés sur l'amélioration des limites de détection en spectrométrie gamma. En effet, une marge de gain significatif est envisageable par la mise en œuvre de techniques de réduction du bruit de diffusion Compton autour de la plateforme ADONIS. Cette piste de développement sera l'axe fort des suites de la présente thèse. Dans le futur, des essais de spectrométrie gamma sur boucle sodium utilisant une chaîne hauts taux de comptage telle qu'ADONIS seraient également d'une grande aide pour statuer définitivement sur la faisabilité de cette spectrométrie.



# REFERENCES

- [1] “The Generation IV International Forum.” [Online]. Available: [www.gen-4.org](http://www.gen-4.org).
- [2] AIEA, “Uranium 2014 : Ressources , production et demande,” Rapport AIEA, 2014.
- [3] J. Couturier, “Approche de la sûreté des réacteurs nucléaires de génération IV,” *Tech. l'ingénieur*, vol. 33, 2013.
- [4] IRSN, “Examen des systèmes nucléaires de 4 ème génération,” Rapport IRSN, 2015.
- [5] SFEN, “Le projet ASTRID,” Rapport SFEN/GR21, 2013.
- [6] OECD/NEA, “Technology Roadmap Update for Generation IV Nuclear Energy Systems,” Rapport OECD/NEA, 2014.
- [7] CEA/Nuclear Energy Division, “Conclusion,” in *Les réacteurs nucléaires à caloporteur sodium*, 2014.
- [8] CEA/Nuclear Energy Division, “La technologie des RNR-Na,” in *Les réacteurs nucléaires à caloporteur sodium*, 2014.
- [9] CEA/Nuclear Energy Division, “Le cycle du combustible des réacteurs à neutrons rapides,” in *Les réacteurs nucléaires à caloporteur sodium*, 2014.
- [10] CEA/Nuclear Energy Division, “Pourquoi des réacteurs rapides refroidis au sodium ? ...,” in *Les réacteurs nucléaires à caloporteur sodium*, 2014.
- [11] CEA/Nuclear Energy Division, “Historique et bilan de fonctionnement des RNR-Na,” in *Les réacteurs nucléaires à caloporteur sodium*, 2014.
- [12] ARA-SGN, “Réacteurs à neutrons rapides - Retour d'expérience et stratégies de développement,” Rapport ARA-SGN, 2014.
- [13] J. Gourdon, M. Besoux, and J. C. Chenal, “Mesures de puissance au démarrage de RAPSODIE-FORTISSIMO.” Rapport CEA, 1972.

- [14] CEA/Nuclear Energy Division, *Avancées des recherches sur la séparation-transmutation et le multi-recyclage du plutonium dans les réacteurs à flux de neutrons rapides*. 2015.
- [15] CEA/Nuclear Energy Division, *4th Generation Sodium-cooled Fast Reactors. The ASTRID technological demonstrator*, no. December 2012. CEA, 2012.
- [16] CEA, “ASTRID , une option pour la quatrième génération,” *Les défis du CEA*, 2014.
- [17] CEA/Nuclear Energy Division, *Les réacteurs à neutrons rapides de quatrième génération à caloporteur sodium - Le démonstrateur technologique ASTRID*. CEA/DEN, 2012.
- [18] Le Monde Economie, “Astrid, le nouveau réacteur français à 5 milliards d’euros,” 2015.
- [19] P. Chenebault and A. Chalony, “Etude des ruptures de gaines dans les réacteurs à neutrons rapides - Programme expérimental VOLGA,” Rapport CEA, 1978.
- [20] J. P. Trapp, “Ruptures de gaine dans les réacteurs rapides refroidis au sodium - Phénoménologie et détection en réacteur,” Rapport CEA, 2000.
- [21] R. Coulon, “LIST/DCSI/RAP/13-0078 - Synthèse sur la surveillance de l’intégrité des gaines combustibles pour les réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium liquide,” Rapport CEA, 2013.
- [22] P. Michaille, J.-P. Jeannot, and G. Guillot, “Synthèse des ruptures de gaine ‘gaz,’” Rapport PHENIX, 2008.
- [23] M. B. Chadwick, M. Herman, P. Obložinský, M. E. Dunn, Y. Danon, a. C. Kahler, D. L. Smith, B. Pritychenko, G. Arbanas, R. Arcilla, R. Brewer, D. a. Brown, R. Capote, a. D. Carlson, Y. S. Cho, H. Derrien, K. Guber, G. M. Hale, S. Hoblit, S. Holloway, T. D. Johnson, T. Kawano, B. C. Kiedrowski, H. Kim, S. Kunieda, N. M. Larson, L. Leal, J. P. Lestone, R. C. Little, E. a. McCutchan, R. E. MacFarlane, M. MacInnes, C. M. Mattoon, R. D. McKnight, S. F. Mughabghab, G. P. a. Nobre, G. Palmiotti, a. Palumbo, M. T. Pigni, V. G. Pronyaev, R. O. Sayer, a. a. Sonzogni, N. C. Summers, P. Talou, I. J. Thompson, a. Trkov, R. L. Vogt, S. C. van der Marck, a. Wallner, M. C. White, D. Wiarda, and P. G. Young, “ENDF/B-VII.1 Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data,” *Nucl. Data Sheets*, vol. 112, no. 12, pp. 2887–2996, Dec. 2011.
- [24] H. Hamrita, S. Normand, and C. Jammes, “Chambre à Fission Haute Température. Préparation des essais d’irradiations des chambres CFUE32 sur PAGURE. Rapport technique DRT/LIST/DCSI/RAP/11-0597,” Rapport CEA, 2011.
- [25] P. Filliatre and C. Jammes, “Conception de la DNDI : Solution de référence et voies d’amélioration,” Note CEA, 2012.
- [26] C. Jammes, P. Filliatre, B. Geslot, T. Domenech, and S. Normand, “Etat de l’art sur les chambres à fission fonctionnant à haute température. Rapport technique SPEX/LDCI/10/024,” Rapport CEA, 2010.
- [27] H. Hamrita and C. Jammes, “Chambre à Fission Haute Température - Essais d’irradiations des chambres CFUE32 sur SAPHIR,” Rapport CEA, 2014.

- [28] C. Jammes, P. Filliatre, Z. Elter, V. Verma, G. De Izarra, H. Hamrita, M. Bakkali, N. Chapoutier, A. Scholer, D. Verrier, C. Hellesen, S. J. Svärd, B. Cantonnet, J. Nappé, P. Molinié, P. Dessante, R. Hanna, M. Kirkpatrick, E. Odic, and F. Jadot, “Progress in the development of the neutron flux monitoring system of the French GEN-IV SFR: simulations and experimental validations,” in *Advancements in Nuclear Instrumentation Measurement Methods and their Applications*, 2015.
- [29] P. Moliné, R. Hanna, E. Odic, M. Kirkpatrick, and P. Dessante, “Etude de la fiabilité de l’isolation électrique des Chambres à Fission à Haute Température (CFHT),” Rapport Supélec, 2013.
- [30] H. Chantot, J. P. Pages, and C. Berlin, “Programme EROS - Rapport de synthèse sur les essais réalisés,” Rapport CEA, 1977.
- [31] Y. Guerin, D. Parrat, and J. Noirot, “Nuclear Fuels for Light Water Reactors and Fast Reactors.” Cours INSTN, 2012.
- [32] S. R. De Groot and P. Mazur, *Non-Equilibrium Thermodynamics*. Dover Publication, 1984.
- [33] K. Tanaka, S. Miwa, I. Sato, T. Hirosawa, H. Obayashi, S. Koyama, H. Yoshimochi, and K. Tanaka, “Microstructure and elemental distribution of americium-containing uranium plutonium mixed oxide fuel under a short-term irradiation test in a fast reactor,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 385, no. 2, pp. 407–412, Mar. 2009.
- [34] M. Bober, G. Schumacher, and D. Geithoff, “Plutonium redistribution in fast reactor mixed oxide fuel pins,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 47, pp. 187–197, 1973.
- [35] C. F. Clement and M. W. Finnis, “Plutonium redistribution in mixed oxide (U,Pu)O<sub>2</sub> nuclear fuel elements,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 75, pp. 193–200, 1978.
- [36] S. Guarro and D. R. Olander, “Actinide redistribution due to pore migration in hypostoichiometric mixed-oxide fuel pins,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 57, pp. 136–144, 1975.
- [37] M. Boidron, “General behaviour of liquid metal reactor fuel element,” Rapport CEA, 1993.
- [38] I. Sato, T. Nakagiri, T. Hirosawa, S. Miyahara, and T. Namekawa, “Fission Products Release from Irradiated FBR MOX Fuel during Transient Conditions,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 40, no. 2, pp. 104–113, Feb. 2003.
- [39] H. Kleykamp, “THE CHEMICAL STATE OF THE FISSION PRODUCTS IN OXIDE FUELS,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 131, pp. 221–246, 1985.
- [40] M. Bober and G. Schumacher, “Material transport in the temperature gradient of fast reactor fuels,” *Adv. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 7, pp. 121–79, 1973.
- [41] H. Hallberg, “<http://www.hhallberg.com/>.” .
- [42] J. R. Hofmann and C. C. Meek, “Internal Pressurization in Solid Mixed-Oxide Fuel Due to Transient Fission Gas Release,” *Nucl. Sci. Eng.*, vol. 64, pp. 713–723, 1977.
- [43] B. J. Lewis and A. Husain, “Modelling the activity of <sup>129</sup>I in the primary coolant of a CANDU reactor,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 312, pp. 81–96, 2003.

- [44] I. Sato, H. Furuya, T. Arima, K. Idemitsu, and K. Yamamoto, "Behavior of metallic fission products in uranium-plutonium mixed oxide fuel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 273, pp. 239–247, 1999.
- [45] K. Maeda, K. Tanaka, T. Asaga, and H. Furuya, "Distributions of volatile fission products in or near the fuel-cladding gap of the FBR MOX fuel pins irradiated to high burn-up," *J. Nucl. Mater.*, vol. 344, no. 1–3, pp. 274–280, Sep. 2005.
- [46] M. Tourasse, M. Boidron, and B. Pasquet, "Fission product behaviour in Phenix fuel pins at high burnup," *J. Nucl. Mater.*, vol. 188, pp. 49–57, 1992.
- [47] A. Karahan, "Modeling of thermo-mechanical and irradiation behaviour of metallic and oxide fuels for sodium fast reactors," Thèse MIT, 2009.
- [48] T. Ozawa and T. Abe, "DEVELOPMENT AND VERIFICATIONS OF FAST REACTOR FUEL DESIGN CODE," *Nucl. Technol.*, vol. 156, pp. 39–55, 2006.
- [49] A. Chalony, G. Farges, and C. Jean, "Les ruptures de gaines en réacteur à neutrons rapides - Evolution sous irradiation et conséquences," Rapport CEA, 1979.
- [50] J. Rouault, "La réaction oxyde-sodium," Rapport CEA, 1985.
- [51] N. Moulin, "La réaction oxyde/sodium: synthèse bibliographique," Rapport CEA, 1996.
- [52] J. Rouault, "Approche d'une modélisation de la réaction oxyde-sodium," Rapport CEA, 1983.
- [53] H. Mikailoff, "Les effets d'une entrée de sodium dans un élément combustible oxyde de réacteur rapide," Rapport CEA, 1971.
- [54] J. J. Lipsett and C. M. Tseng, "Delayed-neutron systems for failed fuel location in CANDU reactors," *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 23, pp. 325–330, 1976.
- [55] A. Sari, F. Carrel, M. Gmar, F. Lainé, A. Lyoussi, and S. Normand, "Detection of Actinides With an Electron Accelerator by Active Photoneutron Interrogation Measurements," *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 59, pp. 605–611, 2012.
- [56] R. C. Mobley and R. A. Laubenstein, "Photo-Neutron Thresholds of Beryllium and Deuterium," *Phys. Rev.*, vol. 80, pp. 309–314, 1950.
- [57] K. Hara, H. Utsunomiya, S. Goko, H. Akimune, T. Yamagata, M. Ohta, H. Toyokawa, K. Kudo, A. Uritani, Y. Shibata, Y.-W. Lui, and H. Ohgaki, "Photodisintegration of deuterium and big bang nucleosynthesis," *Phys. Rev. D*, vol. 68, pp. 072001–1–072001–6, Oct. 2003.
- [58] B. Majournat, "Optimisation of the failed fuel location system," Rapport Novatome, 1992.
- [59] P. Filliatre, C. Jammes, N. Chapoutier, J.-P. Jeannot, F. Jadot, R. Batail, and D. Verrier, "In vessel detection of delayed neutron emitters from clad failure in sodium cooled nuclear reactors: An estimation of the signal," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 744, pp. 1–10, Apr. 2014.

- [60] T. Sauvage, “Intégrité du coeur d’un réacteur à neutrons rapides,” Rapport CNAM, 1985.
- [61] R. Dobrin, T. Craciunescu, and I. Liviu, “The analysis of failed nuclear fuel rods by gamma computed tomography,” *J. Nucl. Mater.*, vol. 246, pp. 37–42, 1997.
- [62] OECD/NEA, “<http://www.oecd-nea.org>.” .
- [63] R. Coulon, S. Normand, G. Ban, E. Barat, T. Montagu, T. Dautremer, H.-P. Brau, V. Dumarcher, M. Michel, L. Barbot, T. Domenech, K. Boudergui, J.-M. Bourbotte, P. Jousset, G. Barouch, S. Ravaux, F. Carrel, N. Saurel, A. M. Frelin-Labalme, H. Hamrita, and V. Kondrasovs, “Delayed gamma power measurement for sodium-cooled fast reactors,” *Nucl. Eng. Des.*, vol. 241, pp. 339–348, Jan. 2011.
- [64] S. C. Fultz, J. T. Caldwell, B. L. Berman, R. L. Bramblett, and R. R. Harvey, “Photoneutron Cross Sections for C12 and Al27,” *Phys. Rev.*, vol. 143, pp. 790–796, 1966.
- [65] R. Koch and H. H. Thies, “The photoneutron cross section in C13,” *Nucl. Phys. A*, vol. 272, pp. 296–302, 1976.
- [66] P. Rinard, “Neutron Interactions with Matter,” in *Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials*, 1991, p. 357.
- [67] T. Domenech, “Influence de rayonnement gamma sur la sensibilité aux neutrons thermiques des compteurs proportionnels à Hélium 3,” Rapport CEA, 2010.
- [68] D. H. Beddingfield, N. H. Johnson, and H. O. Menlove, “He3 neutron proportional counter performance in high gamma-ray dose environments,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 455, pp. 670–682, 2000.
- [69] D. B. Pelowitz, *MCNPX USER’S MANUAL Version 2.7.0 LA-CP-11-00438*, no. April 2011. 2011.
- [70] C. Passard, A. Mariani, F. Jallu, J. Romeyer-dherbey, H. Recroix, M. Rodriguez, J. Lorida, C. Denis, and H. Toubon, “Promethee : an alpha low level waste assay system using passive and active neutron measurement methods management and disposal,” *Nucl. Technol.*, vol. 140, pp. 304–314, 2002.
- [71] D. Paul, “De la dose au dosimètre.” Document INSTN, 2000.
- [72] R. C. Greenwood and K. D. Watts, “Delayed Neutron Energy Spectra of Br87, Br88, Br89, Br90, I137, I138, I139, and Te136,” *Nucl. Sci. Eng.*, vol. 2, pp. 324–332, 1997.
- [73] H. Tagziria and M. Looman, “The ideal neutron energy spectrum of  $^{241}\text{AmLi}(\alpha,n)^{10}\text{B}$  sources,” *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 70, no. 10, pp. 2395–402, Oct. 2012.
- [74] S. Gatorze, “Apport de la spectrométrie gamma en ligne dans l’exploitation d’une boucle d’irradiation de crayons combustibles R.E.P auprès du réacteur expérimental OSIRIS,” Mémoire CNAM, 2003.
- [75] J. Plagnard, J. Morel, and a T. Tuan, “Metrological characterization of the ADONIS system used in gamma-ray spectrometry,” *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 60, no. 2–4, pp. 179–83, 2004.

- [76] E. Abou Mansour, “Quantification préliminaire des termes sources,” Rapport Areva, 2011.
- [77] K. Krane, *Introductory Nuclear Physics*. John Wiley & Sons, 1987, pp. 272–288.
- [78] G. R. Gilmore, *Practical Gamma-ray Spectrometry*. John Wiley & Sons, 2008.
- [79] R. A. Bechtold, F. E. Holt, G. E. Meadows, and R. E. Schenter, “Reactor cover gas monitoring at the fast flux test facility,” Rapport Westinghouse Hanford Compagny, 1986.
- [80] L. Brissonneau, “Rex sur le transfert de masse et la contamination dans les réacteurs rapides refroidis au sodium,” Rapport CEA, 2007.
- [81] C. Berlin and M. Gautier, “Résultats des analyses radiochimiques du sodium primaire de RAPSODIE effectuées au cours de la 38ième CI,” Rapport CEA, 1975.
- [82] P. Filliatre, C. Jammes, and V. Verma, “Etude de la DRG-Gaz : modélisation de la fuite et identification des isotopes d ’ intérêt,” Rapport CEA, 2015.
- [83] A. Tsilanizara, C. M. Diop, B. Nimal, M. Detoc, L. Lunéville, M. Chiron, T. D. Huynh, I. Brésard, M. Eid, J. C. Klein, B. Roque, P. Marimbeau, C. Garzenne, J. M. Parize, and C. Vergne, “DARWIN: An Evolution Code System for a Large Range of Applications,” *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 37, no. sup1, pp. 845–849, Aug. 2014.
- [84] A. Michel, “Etude du comportement des gaz de fission dans le dioxyde d’uranium: mécanismes de diffusion, nucléation et grossissement de bulles,” Thèse de l’Université Caen Basse Normandie, 2012.
- [85] J. Martin, “Étanchéité en mécanique,” in *Techniques de l’ingénieur*, 2004.
- [86] C. Venard, D. Blanchet, L. Buiron, P. Sciora, M. Vanier, and A. Conti, “ASTRID - Pré-design du cœur CFV -1500-AIM1 V3 Données cœur,” Rapport CEA, 2012.
- [87] G. F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement 4th edition*. John Wiley & Sons, 2010.
- [88] H. Fanet, “Électronique associée aux détecteurs de rayonnements,” in *Techniques de l’ingénieur*, 2002.
- [89] G. P. Westphal, “Real-time correction of counting losses in nuclear pulse spectroscopy,” *J. Radioanal. Chem.*, vol. 70, no. 1, pp. 387–410, 1982.
- [90] M. Blaauw and R. F. Fleming, “Statistical properties of gamma-ray spectra obtained with loss-free or zero-dead-time counting, and ORTEC’S ‘variance spectrum,’” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 505, no. 1–2, pp. 306–310, Jun. 2003.
- [91] M. Basseville and I. V. Nikiforov, *Detection of Abrupt Changes: Theory and Application*. Prentice-Hall, 1993.
- [92] E. Barat, T. Dautremer, T. Montagu, and J.-C. Trama, “A bimodal Kalman smoother for nuclear spectrometry,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 567, no. 1, pp. 350–352, Nov. 2006.

- [93] R. E. Kalman, "A New Approach to Linear Filtering and Prediction Problems," *J. Basic Eng.*, vol. 82, no. Series D, pp. 35–45, 1960.
- [94] F. Auger, *Introduction à la théorie du signal et de l'information*. Collection Sciences et Technologies, 1999.
- [95] M. Niedzwiecki and C. Krzysztof, "Adaptive Scheme for Elimination of Broadband Noise and Impulsive Disturbances from AR and ARMA Signals," *IEEE Trans. Signal Process.*, vol. 44, no. 3, pp. 528–537, 1996.
- [96] A. E. Bryson and M. Frazier, "Smoothing for linear and nonlinear dynamic systems," in *Proceedings of the optimum system synthesis conference*, 1963, pp. 354–364.
- [97] R. Coulon, "Tests comparatifs de chaînes numériques de spectrométrie gamma pour diodes HPGe . ADONIS - LYNX - DSPEC PRO," Rapport CEA, 2009.
- [98] R. Coulon, "Spectrométrie gamma haute résolution et hauts taux de comptage sur primaire de réacteur de type génération 4 au sodium liquide," Thèse de l'Université Caen Basse Normandie, 2010.
- [99] M. . Mariscotti, "A method for automatic identification of peaks in the presence of background and its application to spectrum analysis," *Nucl. Instruments Methods*, pp. 309–320, 1967.
- [100] C. E. Antoniak, "Mixtures of Dirichlet Processes with Applications to Bayesian Nonparametric Problems," *Ann. Stat.*, vol. 2, no. 6, pp. 1152–1174, 1974.
- [101] M. Lavine, "Some Aspects of Polya Tree Distributions for Statistical Modelling," *Ann. Stat.*, vol. 20, no. 3, pp. 1222–1235, 1992.
- [102] H. Ishwaran and L. F. James, "Gibbs Sampling Methods for Stick-Breaking Priors," *J. Am. Stat. Assoc.*, vol. 96, no. 453, pp. 161–173, 2001.
- [103] M. Blaauw, V. Osorio Fernandez, and W. Westmeier, "IAEA y-ray spectra for testing of spectrum analysis software," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A*, vol. 387, pp. 410–415, 1997.
- [104] M. Rodrigez, "Poisson Models for Count Data," in *Generalized Linear Models*, 2007, pp. 1–14.
- [105] C. Vincent, "The relationship between the speed of response of a linear ratemeter and the amplitude of its random fluctuations," *Nucl. Instruments Methods*, vol. 23, pp. 193–196, 1963.
- [106] I. D. Vankov, G. S. Ganev, R. M. Ivanov, and M. Müller, "Self adapting ratemeter," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res.*, vol. 214, no. 2–3, pp. 395–400, 1983.
- [107] V. Arandjelovic, A. Koturovic, and R. Vukanovic, "A software method for suppressing statistical fluctuations in preset count digital-rate meter algorithms," *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 49, no. 5, pp. 2561–2566, 2002.
- [108] P. Dumesnil and J. L. Greco, "Improvements in data processing from a doorway monitor," in *Symposium on safeguards research and nuclear material management*, 1985.

- [109] Z. Savic, “Some software algorithms for microprocessor ratemeters,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 301, no. 3, pp. 517–522, 1991.
- [110] H.-J. Jeong, W.-T. Hwang, E.-H. Kim, and M.-H. Han, “Statistical approaches to forecast gamma dose rate by using measurements from the atmosphere,” *Radiat. Prot. Dosimetry*, 2008.
- [111] P. E. Fehlau, “Comparing a recursive digital filter with the moving-average and sequential probability-ratio detection methods for SNM portal monitors,” *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 40, no. 2, pp. 143–146, 1993.
- [112] G. Apostolopoulos, “On-line statistical processing of radiation detector pulse trains with time-varying count rates,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 595, no. 2, pp. 464–473, 2008.
- [113] R. Coulon, J. Dumazert, V. Kondrasovs, and S. Normand, “Implementation of a nonlinear filter for online nuclear counting,” *Radiat. Meas.*, vol. 87, pp. 13–23, 2016.
- [114] R. Coulon, V. Kondrasovs, J. Dumazert, and E. Rohée, “Nuclear counting filter based on a Centered Skellam Test and a double Exponential Smoothing,” in *2015 4th International Conference on Advancements in Nuclear Instrumentation Measurement Methods and their Applications (ANIMMA)*, 2015, pp. 1–7.
- [115] R. G. Brown, *Smoothing, forecasting and prediction of discrete time series*. Prentice-Hall, 1962.
- [116] E. S. Gardner, “Exponential smoothing: The state of the art—Part II,” *Int. J. Forecast.*, vol. 22, no. 4, pp. 637–666, 2006.
- [117] B. Houdaille, N. Vignesoult, R. Atabek, and J. Joseph, “Procédé ‘FABRICE’ de reconstitution en cellule chaude de crayons expérimentaux à partir de crayons préirradiés en réacteurs de puissance,” Rapport CEA, 1981.
- [118] N. Vignesoult, R. Atabek, and S. Ducas, “Procédé ‘FABRICE’ de reconstitution en cellule chaude de crayons expérimentaux à partir de crayons préirradiés en réacteurs de puissance,” Rapport CEA, 1982.
- [119] D. Karamanis, V. Lacoste, S. Andriamonje, G. Barreau, and M. Petit, “Experimental and simulated efficiency of a HPGe detector with point-like and extended sources,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A*, vol. 487, pp. 477–487, 2002.
- [120] P. Dryak and P. Kovar, “Experimental and MC determination of HPGe detector efficiency in the 40-2754 keV energy range for measuring point source geometry with the source-to-detector distance of 25 cm.,” *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 64, no. 10–11, pp. 1346–9, 2006.



## **Titre**

Détection des ruptures de gaines sur RNR-Na par spectrométrie gamma hauts taux de comptage

## **Résumé**

La problématique de détection de ruptures de gaines, via le suivi des produits de fission potentiellement relâchés dans le sodium primaire, apparaît d'une importance capitale pour les réacteurs de génération 4 de type RNR-Na et en particulier pour le futur démonstrateur industriel ASTRID. Cette thèse vise à proposer des voies d'améliorations notables de l'instrumentation nucléaire dédiée à la détection de ces ruptures de gaines. Une première étude relative à l'optimisation en termes de rapport signal sur bruit de l'instrumentation existante, basée sur la détection des neutrons retardés (*Delayed Neutron Detection*), est proposée. Le retour d'expérience ainsi que les simulations Monte-Carlo réalisées démontrent une perturbation du signal neutronique utile par les photoneutrons produits dans le polyéthylène. Une solution de remplacement de ce matériau, basée sur l'utilisation de graphite, est proposée et ses performances évaluées via des simulations Monte-Carlo et une campagne d'expériences. La seconde piste étudiée, technologiquement plus ambitieuse, concerne l'enrichissement de l'instrumentation existante via l'introduction d'une méthode innovante, reposant sur une spectrométrie gamma hauts taux de comptage sur le sodium caloporteur. Au-delà d'apporter une redondance à l'instrumentation actuelle, une telle spectrométrie permettrait d'enrichir le diagnostic de rupture de gaine par une mesure plus complète et plus précoce (plus large gamme de produits de fission accessible). Dans un premier temps, une étude de faisabilité est menée par simulation Monte-Carlo, via la modélisation d'un poste de mesure et la simulation de la réponse du détecteur HPGe. Des activités minimales détectables sont calculées pour les produits de fission d'intérêt et comparées à des résultats de simulation de rejet, suite à un scénario de perte d'étanchéité de la gaine. Dans un second temps, la spectrométrie gamma hauts taux de comptage, basée sur l'utilisation de la chaîne de spectrométrie ADONIS développée par le CEA LIST, a été testée et validée en environnement réel, grâce à l'installation d'un poste de mesure sur la boucle d'irradiation de crayons combustible ISABELLE 1 du réacteur OSIRIS. Plusieurs campagnes d'irradiations ont été suivies dans le cadre de cette thèse, deux d'entre elles permettant de suivre un processus de rupture de gaine à l'aide de cette approche.

## **Title**

Clad failures detection on sodium-cooled fast reactors by high count rate gamma spectroscopy

## **Abstract**

The question of clad failures detection, through the monitoring of potentially released fission products in the primary sodium, is of utmost importance for SFR type generation IV reactors, and in particular for the future ASTRID industrial demonstrator. This thesis aims to propose ways to significantly improve the nuclear instrumentation dedicated to clad failures detection. A first study regarding the signal-to-noise ratio of the existing instrumentation, which is based on Delayed Neutron Detection (DND), is proposed. The experience feedback, as well as the Monte Carlo simulations, shows a disturbance of the useful neutron signal by photoneutrons produced in the polyethylene. A material replacement solution based on the use of graphite is proposed, and its performances are evaluated by Monte Carlo simulations and experiments. The second lead followed, technologically more ambitious, consists in enriching the existing instrumentation by introducing an innovative method, based on high count rate gamma spectroscopy on the primary sodium. In addition to bringing redundancy to the current instrumentation, such a spectroscopy would permit to enrich the clad failure diagnosis with an earlier and more complete measure (broader range of accessible fission products). First, a feasibility study is carried out using Monte Carlo simulations, by modeling a measurement station and simulating the HPGe detector response. Minimal detectable activities are calculated for the fission products of interest, and compared with results from simulations of release following a clad failure scenario. In a second stage, high count rate gamma spectroscopy using the ADONIS spectrometry system developed by CEA LIST was tested and validated in a real environment, by installing a measuring station on the ISABELLE 1 fuel pin irradiation loop at the OSIRIS reactor. Several irradiations have been monitored in this thesis, two of which allowed to follow a clad failure process using this approach.