



**HAL**  
open science

# Spectrométrie gamma haute résolution et bas bruit Compton pour la détection des ruptures de gaine dans les réacteurs rapides refroidis au sodium

Sara Garti

► **To cite this version:**

Sara Garti. Spectrométrie gamma haute résolution et bas bruit Compton pour la détection des ruptures de gaine dans les réacteurs rapides refroidis au sodium. Génie civil nucléaire. Université Grenoble Alpes [2020-..], 2020. Français. NNT: 2020GRALI016 . tel-02862768

**HAL Id: tel-02862768**

**<https://theses.hal.science/tel-02862768>**

Submitted on 9 Jun 2020

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



## THÈSE

Pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITE GRENOBLE ALPES**

Spécialité : **Mécanique des fluides, procédés, énergétique.**

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

**Sara GARTI**

Thèse dirigée par **Christian JAMMES**

et encadrée par **Romain COULON**

préparée au sein du **Service Capteurs et Instrumentation du CEA LIST.**

# Spectrométrie gamma haute résolution et bas bruit Compton pour la détection des ruptures de gaine dans les RNR-Na

Thèse soutenue publiquement le « **03/03/2020** »,  
devant le jury composé de :

**M. Benoît GALL**

Professeur des Universités à l'Université de Strasbourg, Président.

**Mme Elsa MERLE**

Professeur des Universités à PHELMA, Examinatrice.

**M. Gilles BAN**

Professeur des Universités à l'ENSICEAN, Rapporteur.

**M. Lionel DESGRANGES**

Ingénieur chercheur au CEA, Rapporteur.

**M. Christian JAMMES**

Ingénieur chercheur au CEA, Directeur de thèse.

**M. Romain COULON**

Physicien au BIPM, Encadrant de thèse.





*A mes parents et à mon frère*  
*A mon Ben et à ma seconde famille*  
*A mes proches et mes amis*



# REMERCIEMENTS

*Mes remerciements s'adressent tout d'abord aux membres du jury qui ont accepté d'évaluer ces travaux de recherche et qui m'ont fait l'honneur de participer à ma soutenance de thèse.*

Merci à M. Benoît Gall, professeur de l'université de Strasbourg, qui a présidé le jury, à Mme Elsa Merle, professeur de l'école PHELMA, qui a été examinatrice, à M. Gilles Ban professeur de l'école ENSICAEN et M. Lionel Desgranges ingénieur chercheur du CEA qui ont été les rapporteurs de ce travail de thèse. Merci à M. Christian Jammes, ingénieur chercheur du CEA, qui a assuré la direction et le suivi de ces travaux de recherche.

*Mes remerciements vont au Département de la Métrologie Instrumentation & Information DM2I.*

J'adresse mes remerciements à M. Alexandre Bounouh, chef du CEA LIST et ancien chef du DM2I, à Mme Lorène Allano, cheffe du DM2I, à M. Karim Boudergui, chef du service SCI et à M. Frédérick Carrel chef du laboratoire LCAE où j'ai pu mener à bien ces travaux de thèse. Merci pour votre confiance et soutien qui m'ont été d'une aide très précieuse.

*Je tiens à exprimer mes remerciements, les plus profonds, à l'ensemble de mes collègues du LCAE.*

Je remercie Fred « le nouveau » pour sa disponibilité, son soutien et sa pointilleuse lecture du présent mémoire. Merci à Vesna, Hamid, Nathalie, Vincent S, Mathieu T, Sofiane, Quentin, Dominique et à Chrystèle pour les moments partagés ensemble, pour votre écoute, pour vos conseils et votre bienveillance infaillibles qui m'ont donné la force et la détermination de continuer. Merci aux thésards Nicolas et Vincent V, je compte sur vous pour faire briller la filière bordelaise au LCAE dont j'ai eu l'honneur d'ouvrir le bal. Merci à Fred « l'ancien du coup » pour sa joie et sa bonne humeur communicatives et à qui je souhaite une retraite des plus paisibles.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à l'ensemble de mes collègues : physiciens nucléaires, chimistes et électroniciens.

*Je n'ai pas l'intention d'oublier mon encadrant...*

Ces travaux de recherche n'auraient pas été possibles sans la confiance que m'a accordée mon encadrant Romain Coulon à qui j'adresse ma reconnaissance la plus profonde. Son soutien, sa bienveillance, sa qualité d'encadrement et sa grande rigueur scientifique telles sont les qualités qui ont mené à des échanges très fructueux et à l'aboutissement de ces travaux de thèse. Il a su m'aiguiller et me conseiller tout en me laissant une grande autonomie sur ce projet de recherche. Ce fût un plaisir pour moi d'évoluer à ses côtés durant ces trois années ...plus qu'un encadrant, il est pour moi l'exemple à suivre et j'espère un jour atteindre son excellence scientifique.

*Ni mes amis....*

Merci à Mathilde pour son soutien infaillible et son altruisme sans faille. Merci pour les échanges, les blagues à mourir de rire...ou pas, les joggings de midi...

Merci à mon binôme préféré Adrien pour son amitié et ses conseils. Le respect, le professionnalisme et la grande générosité nous ont mené à des projets réussis, à des dépôts de brevets et à de nombreuses valorisations scientifiques. La confiance qu'il m'a accordée pour

collaborer sur ses projets m'a permis d'élargir mon socle de compétences bien au-delà de mon projet de thèse.

*Et ma famille...*

Je tiens à remercier particulièrement mes parents pour leurs sacrifices, leurs confiance et bienveillance tout au long de mon cursus. Ma plus profonde gratitude va à mon Ben qui a cru en moi, soutenu et supporté même dans les moments les plus critiques de cette thèse.

Enfin, je remercie l'ensemble de ma famille à qui je dédie ce présent mémoire.

*Merci à vous tous !*

## VALORISATIONS SCIENTIFIQUES

S. Garti, *et al.* “Refined multiphysics model of clad failure for Sodium Fast Reactor instrumentation”, 6<sup>th</sup> International Conference on Advancements in Nuclear Instrumentation Measurements Methods and their Applications (ANIMMA), Portoroz, Slovénie, 2019. (Chapitre 2 et 3 du manuscrit)

S. Garti, *et al.* “Improved detection limits in challengingly signal to noise ratio gamma-ray spectrometry: Active Shielding for SFR instrumentation & monitoring”, 6<sup>th</sup> International Conference on Advancements in Nuclear Instrumentation Measurements Methods and their Applications (ANIMMA), Portoroz, Slovénie, 2019. (Chapitre 5 et une partie du chapitre 6 de ce manuscrit).

S. Garti, *et al.* “A high sensitivity Compton Suppressor System for nuclear waste characterization”. Information System on Occupational Exposure, Uppsala, Suède, 2018.

S. Garti, *et al.* “A model to predict fission products diffusion & release in (Pu, U)O<sub>2</sub> matrix for SFR clad failure detection”. IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (NSS/MIC), Sydney, Australie, 2018. (Chapitre 4 du manuscrit).

S. Garti, *et al.* “Characterizing low-activity waste containers: a case study for Compton Suppression Systems under challenging signal-to-noise ratio”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 949 (2020) 162806. (Une partie du chapitre 5 du manuscrit).

S. Garti, *et al.* “A model to predict fission product diffusion in (Pu,U)O<sub>2</sub> matrix for SFR clad failure detection”. *IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference Proceedings* (NSS/MIC 2018). (Chapitre 3 et 4 du manuscrit).

R. Coulon, E. Rohée, J. Dumazert, S. Garti, P. Filliatre, C. Jammes. “Design of a delayed neutron detection system for the ASTRID Sodium-cooled fast reactor”, *The European Physical Journal Conferences* 170, 04006 (2018).

S. Garti, *et al.* “A model to predict fission product diffusion in (Pu,U)O<sub>2</sub> matrix for SFR clad failure detection”. *IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference Proceedings* (NSS/MIC 2018). (Chapitre 3 et 4 du manuscrit).

Brevet 1 : Système de spectrométrie, procédé de spectrométrie et produit programme d’ordinateur associés, Commissariat à l’Energie Atomique, demande déposée le 27/09/2018 sous le n° FR1858897.

Brevet 2 : Procédé de caractérisation d’un spectromètre, produit-programme d’ordinateur et calculateur associés, Commissariat à l’Energie Atomique, demande déposée le 17/12/2018 sous le n° FR1873097.





# SOMMAIRE

VALORISATIONS SCIENTIFIQUES .....	5
SOMMAIRE .....	7
TABLE DES FIGURES.....	11
Liste des tableaux.....	13
INTRODUCTION GENERALE.....	15
CHAPITRE I.....	19
1. Les systèmes nucléaires du futur.....	20
2. Les réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium.....	21
2.1. La genèse de la filière sodium en France.....	21
2.1.1. Rapsodie : le premier RNR français .....	21
2.1.2. Phénix : un démonstrateur électrogène .....	22
2.1.3. Superphénix : Phénix renaît-il vraiment de ses cendres ? .....	23
2.2. Intérêts des RNR-Na.....	24
2.2.1. Assurer une durabilité des ressources .....	24
2.2.2. Réduire la radiotoxicité des déchets radioactifs .....	25
2.3. Caractéristiques d'un réacteur à neutrons rapides .....	26
2.3.1. L'architecture d'un RNR-Na.....	26
2.3.2. L'aiguille et l'assemblage combustible.....	27
2.3.3. Le caloporteur.....	29
2.3.4. Instrumentation générale d'un RNR-Na .....	30
3. Un cœur RNR-Na innovant à sûreté améliorée.....	31
3.1. Le point sur le projet ASTRID.....	31
3.2. Cœur à Faible Vidange « CFV ».....	31
3.3. Analyse de sûreté d'un RNR-Na .....	32
4. Conclusion .....	34
CHAPITRE II.....	35
1. La phénoménologie de rupture de gaine.....	36

1.1.	La gaine, son rôle, sa vie.....	36
1.2.	Classification des ruptures de gaine .....	36
1.3.	Architecture du système de mesure de la contamination du caloporteur sodium.....	37
2.	Retour d'expérience sur l'instrumentation DRG-LRG gaz .....	37
2.1.	Détection des ruptures de gaine DRG gaz .....	38
2.2.	Localisation des ruptures de gaine LRG gaz.....	39
2.3.	Instrumentation de mesure pour la DRG-LRG gaz .....	40
2.4.	Bruit de fond de la mesure .....	41
2.5.	Retour d'expérience sur la DRG-LRG gaz .....	41
3.	Retour d'expérience sur l'instrumentation DRG-LRG sodium.....	42
3.1.	Détection des ruptures de gaine DRG sodium .....	43
3.2.	Localisation des ruptures de gaine LRG sodium.....	44
3.3.	Instrumentation de mesure DRG-LRG sodium.....	44
3.4.	Bruit de fond de la mesure .....	45
3.5.	Retour d'expérience sur la DRG-LRG sodium .....	45
4.	Etat des travaux et problématique de la thèse .....	46
	CHAPITRE III.....	49
1.	La nature des produits de fission.....	50
2.	Le combustible RNR-Na .....	50
3.	Le relâchement des gaz de fission hors combustible.....	51
2.1.	Le recul et l'éjection .....	52
2.2.	La diffusion.....	52
4.	Etudes de diffusion des gaz de fission.....	53
3.1.	Le coefficient de diffusion .....	53
3.2.	Etudes de diffusion post-irradiation.....	54
3.3.	Etudes de diffusion sous irradiation .....	57
5.	Conclusion .....	59
	CHAPITRE IV .....	61

1.	Sélection des isotopes d'intérêt.....	62
2.	Modélisation du système fermé.....	63
2.1.	Modèle de migration des produits de fission .....	64
2.2.	Modèle d'accumulation des produits de fission .....	67
3.	Modélisation du système ouvert.....	68
3.1.	Le diagnostic d'une rupture <i>via</i> la courbe <i>R/B</i> .....	68
3.2.	Cinétique de relâchement au travers d'une fuite .....	71
4.	Le relâchement et le transport jusqu'au poste de mesure .....	74
5.	Terme source des produits de fission.....	76
6.	Conclusion .....	79
	CHAPITRE V.....	81
1.	Etat de l'art, facteurs de mérite et choix du détecteur de garde .....	82
1.1.	Principe d'un SSC en anti-coïncidence.....	82
1.2.	Facteurs de mérite d'un SSC.....	83
1.3.	Matériau pour le détecteur de garde .....	83
1.4.	Blindage passif.....	85
2.	Modèle numérique du SSC HPGe/BGO.....	85
2.1.	Briques matérielles pour la construction du modèle.....	85
2.2.	Elaboration d'un algorithme de filtrage des anti-coïncidences .....	86
2.3.	Pré-validation logicielle de la simulation du filtrage en anti-coïncidence .....	90
2.4.	FSC estimés dans la configuration de base du SSC .....	92
3.	Validation expérimentale du modèle de SSC HPGe/BGO .....	94
3.1.	Montage expérimental .....	94
3.2.	Validation du modèle numérique du SSC sans filtrage en anti-coïncidence.....	96
3.3.	Validation du modèle numérique du SSC avec filtrage en anti-coïncidence .....	98
4.	Etude d'optimisation du SSC HPGe/BGO.....	100
4.1.	Epaisseur du cylindre creux de BGO.....	100
4.2.	Epaisseur de la fenêtre d'entrée de BGO .....	101

4.3.	Ouverture de collimation du BGO.....	102
4.4.	Illustration des performances du filtrage SSC.....	103
5.	Conclusion .....	105
CHAPITRE VI .....		107
1.	Données de base, signal et bruit de la mesure.....	109
2.	Méthode .....	112
2.1.	Construction des signaux des produits d'activation .....	113
2.2.	L'élargissement gaussien et l'empilement.....	114
2.3.	L'activité minimale détectable .....	116
3.	Optimisation de la géométrie finale.....	118
4.	Résultats.....	120
4.1.	Le gain du filtrage sur l'activité minimale détectable .....	120
4.2.	Conclusion sur la mesurabilité des produits de fission.....	123
4.2.1.	Mesurabilité des PFs en prospection globale .....	123
4.2.2.	Mesurabilité des PFs en prospection ciblée.....	127
5.	Conclusion .....	130
CONCLUSION GENERALE .....		131
ANNEXE A.....		137
ANNEXE B.....		139
ABREVIATIONS.....		155
REFERENCES.....		157

# TABLE DES FIGURES

Figure 1-1: Vue de dessus des bouchons tournants du réacteur Rapsodie .....	22
Figure 1-2 : Vue plongeante du bâtiment réacteur Phénix.....	22
Figure 1-3 : Vue aérienne de la centrale Phénix.....	23
Figure 1-4 : Le dôme de Superphénix.....	24
Figure 1-5 : Rapports des sections efficaces de fission sur capture des actinides mineurs.....	26
Figure 1-6 : Schéma de principe des architectures intégrée et à boucles .....	27
Figure 1-7 : Assemblage type d'un RNR-Na .....	28
Figure 1-8 : Exemples d'aiguilles combustibles pour un RNR-Na.....	28
Figure 1-9 : Coupe axiale d'une géométrie cœur CFV .....	32
Figure 2-10 : Module de prélèvement d'argon de Superphénix .....	38
Figure 2-11 : Emplacement du bouchon LRG sur le BCC du réacteur Phénix .....	39
Figure 2-12 : Schéma de principe de LRG gaz de Phénix .....	40
Figure 2-13 : Les systèmes DRG-LRG de la centrale Phénix .....	41
Figure 2-14 : Module de prélèvement pour la DRG sodium de Phénix.....	43
Figure 2-15 : Système de localisation LRG sodium de Superphénix .....	44
Figure 2-16 : Schéma général d'un système DND pour la fonction DRG-LRG sodium.....	45
Figure 3-17 : Micrographie d'une aiguille combustible de Phénix .....	51
Figure 3-18 : Représentation de la répartition des différentes populations gazeuses dans une matrice combustible. ....	53
Figure 3-19 : Assemblages de cristallites sphériques de rayon $a$ selon le modèle de A. H. Booth. ....	54
Figure 3-20 : Droite d'Arrhenius dans la littérature pour le xénon. ....	56
Figure 3-21 : Comparaison des diagrammes d'Arrhenius de la littérature obtenus pour le xénon sous irradiation. ....	58
Figure 4-22 : Répartition du champ de température radial dans une pastille combustible type CFV3..	65
Figure 4-23 : Profil de diffusion radial dans la pastille supérieure pour quelques isotopes d'intérêt après 410 jours d'irradiation à puissance nominale. ....	66
Figure 4-24 : Nombre d'atomes de gaz cumulés dans les volumes libres au bout de 410 jours d'irradiation à partir des trois zones combustible. ....	68
Figure 4-25 : Forme typique de la fonction $\ln(R/B) = f(\lambda)$ .....	70
Figure 4-26 : Evolution du régime d'écoulement moléculaire en intermédiaire en fonction du temps de vidange pour une rupture initiale de taille $d_f = 10^{-8}m$ .....	72
Figure 4-27 : Evolution du régime d'écoulement intermédiaire en fonction du temps de vidange pour une rupture initiale de taille $d_f = 10^{-6}m$ .....	73
Figure 4-28 : Evolution du régime d'écoulement laminaire en intermédiaire en fonction du temps de vidange pour une rupture initiale de taille $d_f = 10 \mu m$ .....	74

Figure 4-29 : Evolution des activités volumiques attendues en fonction du temps de vidange pour les isotopes du xénon intervenant à $t_{irr}$ , pour $d_f = 10 \mu m$ et pour un temps de transit $t_r = 60 s$ . ....	77
Figure 4-30 : Evolution des activités volumiques attendues en fonction du temps de vidange pour les isotopes du krypton intervenant à $t_{irr}$ , pour une fuite $d_f = 10 \mu m$ et un temps de transit $t_r = 60 s$ . .	77
Figure 4-31 : Evolution de l'activité volumique du $^{89}Kr$ en fonction du temps de vidange pour une fuite $d_f = 10 \mu m$ intervenant au temps $t_{irr}$ et pour un temps de transit $t_r = 60 s$ .....	78
Figure 5-32 : a) Radiographie X de la diode HPGe, b) Visualisation en coupe 2-D du modèle matériel MCNP6.1, et c) Visualisation en coupe 3-D du SSC à l'intérieur du château de Pb.....	86
Figure 5-33 : Schéma de calcul pour la construction des spectres filtré et non-filtré. ....	88
Figure 5-34 : Algorithme du post-traitement des fichiers PTRAC. ....	89
Figure 5-35 : Rendements spectraux simulés $\tau_{MCNP}$ et $\tau_{PTRAC,non-filtré}$ . ....	91
Figure 5-36 : Positions d'irradiation simulées.....	93
Figure 5-37: Spectres non-filtré ( $s_2$ ) et filtré ( $s_3$ ) avec HPGe/BGO.....	93
Figure 5-38 : Montage expérimental du SSC HPGe/BGO.....	95
Figure 5-39 : Réponses simulées et mesurées dans la configuration $s_1$ en position P1. ....	96
Figure 5-40 : Réponses simulées et mesurées dans la configuration $s_2$ en position P1.....	97
Figure 5-41 : Facteurs $FSC$ expérimentaux et simulés à la position P1 en fonction de l'énergie. ....	99
Figure 5-42 : Facteurs $FSC$ expérimentaux et simulés à 1173,2 keV en fonction de la position. ....	99
Figure 5-43 : Evolution de $FSC$ en fonction de l'épaisseur du cylindre creux de BGO en position P4. ....	101
Figure 5-44 : Evolution de $FSC$ en fonction de l'épaisseur de la fenêtre de BGO en position P4. ....	102
Figure 5-45 : Evolution de $FSC$ et de $P$ en fonction du rayon du collimateur de BGO ( $^{137}Cs$ et $^{60}Co$ ) en position P4.....	103
Figure 5-46 : Superposition des spectres dans les quatre configurations pour l'émetteur $^{137}Cs$ .....	104
Figure 6-47 : Schéma général de la démarche suivie dans ces travaux pour répondre à la problématique du diagnostic des ruptures de gaine par spectrométrie gamma SSC.....	108
Figure 6-48 : Illustration des spectres avec et sans dégazage (avec $^{20}F$ ).....	111
Figure 6-49 : Représentation schématique de la méthodologie de calcul développée.....	112
Figure 6-50 : Spectres obtenus avec et sans la prise en compte de la composante bêta.....	114
Figure 6-51 : Visualisation 2-D du modèle MCNP6.1 du poste final de spectrométrie gamma. ....	118
Figure 6-52 : Evolution des taux de comptage en fonction de la distance source-détecteur. ....	119
Figure 6-53 : $AMD_{PF,nonfiltré}$ et $AMD_{PF,filtré}$ pour l'ensemble des isotopes d'intérêt avec un temps de transit $t_r = 60 s$ et un temps de mesure $t = 60 s$ .....	121
Figure 6-54 : $AMD_{PF,nonfiltré}$ et $AMD_{PF,filtré}$ pour l'ensemble des isotopes d'intérêt avec un temps de transit $t_r = 600 s$ et un temps de mesure $t = 60 s$ .....	122
Figure 6-55 : $FoMs$ obtenus pour les isotopes d'intérêt avec un temps de transit $t_r = 60 s$ et un temps de mesure $t = 60 s$ .....	124

Figure 6-56 : <i>FoMs</i> obtenus pour les isotopes d'intérêt de période moyenne et longue à un temps de transit $t_r = 60$ s et un temps de mesure $t = 60$ s en prospection globale et pendant la bouffée de relâchement. ....	125
Figure 6-57 : <i>FoMs</i> obtenus pour les isotopes d'intérêt de période courte à un temps de transit $t_r = 60$ s et un temps de mesure $t = 60$ s en prospection globale et pendant la bouffée de relâchement. ....	126
Figure 6-58 : <i>FoMs</i> obtenus sans filtrage SSC en anti-coïncidence pour le $^{89}\text{Kr}$ en fonction du temps de transit à un temps de mesure $t = 60$ s. ....	128
Figure 6-59 : <i>FoMs</i> obtenus avec filtrage SSC en anti-coïncidence pour le $^{89}\text{Kr}$ en fonction du temps de transit à un temps de mesure $t = 60$ s. ....	129

## LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1-1 : Facteurs de multiplication des isotopes fissiles en spectre thermique et rapide. ....	24
Tableau 4-2 : Facteur de mérite pour la sélection des gaz de fission d'intérêt. ....	62
Tableau 4-3 : Activités volumiques attendues au poste de mesure des modes de surveillance globale « GN » et ciblée « G1 » pour une taille de fuite $d_f = 10 \mu\text{m}$ et un temps de transit $tr = 60$ s. ....	79
Tableau 5-4 : Propriétés des SSC de haute résolution décrits dans la littérature. ....	84
Tableau 5-5 : Propriétés physiques des matériaux utilisés comme détecteur de garde dans les SSC. ....	84
Tableau 5-6 : Ecart relatif entre le tally 8 et le post-traitement des fichiers PTRAC pour le $^{137}\text{Cs}$ . ....	91
Tableau 5-7 : Facteurs <i>FSC</i> obtenus pour différentes énergies et positions. ....	94
Tableau 5-8 : Le rapport $\omega$ en fonction de l'énergie (configurations $s_1$ et $s_2$ ). ....	97
Tableau 6-9 : Terme source des produits d'activation calculés pour Phénix et d'ASTRID. ....	109
Tableau 6-10 : Emissions gamma $\gamma$ des produits d'activation. ....	110
Tableau 6-11 : Emissions bêta $\beta$ des produits d'activation. ....	110
Tableau 6-12 : Energies d'intérêt des produits de fission. ....	117





## INTRODUCTION GENERALE

Face à une demande grandissante, les énergies fossiles comme le charbon, le gaz et le pétrole sont en voie de raréfaction. Au rythme de la consommation actuelle, des études montrent que les ressources en pétrole et gaz naturel vont arriver à épuisement d'ici quelques dizaines d'années, le charbon quant à lui, d'ici un siècle [1]. Au-delà du caractère précaire de ces ressources, le CO<sub>2</sub> issu de leur combustion joue un rôle majeur parmi les émissions de gaz à effet de serre. Une production d'énergie pérenne et faiblement émettrice de carbone constitue actuellement une source majeure de préoccupation pour la communauté internationale.

Afin d'anticiper cet épuisement, les énergies renouvelables et l'énergie nucléaire sont une bonne alternative sur le moyen et long terme. L'énergie nucléaire présente l'avantage de produire, de façon continue, une grande quantité d'énergie bas carbone permettant de faire face à la demande croissante. Celle-ci représente 72 % de la production électrique française et environ 5 % dans le monde. Toutefois, cette source d'énergie présente l'inconvénient de produire des déchets radioactifs dont certains possèdent une radiotoxicité élevée à long terme et est également confrontée à la raréfaction des ressources en uranium. Par ailleurs, cette source d'énergie doit regagner la confiance de l'opinion publique, suite aux accidents successifs de *Three Mile Island* en 1979, de Tchernobyl en 1986 et, plus récemment, de Fukushima en 2011.

Face à ces enjeux et prises de conscience collective, une initiative de coopération internationale, appelée GIF IV (*Generation IV International Forum*), visant à promouvoir la recherche et le développement et à catalyser les efforts mondiaux pour faire émerger les réacteurs nucléaires du futur a vu le jour en l'an 2000. La concrétisation de ces réacteurs, dits de quatrième génération, permettrait de fermer le cycle du combustible par un multi-recyclage du plutonium, une valorisation de la totalité d'uranium naturel sans nécessité d'enrichissement et surtout, de transmuter les déchets radioactifs en réduisant leur radiotoxicité intrinsèque à long terme.

Considérant les avantages prometteurs qu'offre cette génération, des objectifs pour un nucléaire plus sûr et durable qui prend sa part dans le mix énergétique mondial ont été définis par la charte du Forum GIF IV. Fortement investi dans cette initiative, la France a entrepris, en réponse à la loi du 28 juin 2006 relative à la « gestion durable des matières nucléaires et déchets radioactifs », des études de recherche et de développement d'un démonstrateur de quatrième génération type RNR-Na « Réacteur à Neutrons Rapides refroidi au sodium » visant des progrès notables en matière de sûreté, de disponibilité et de compétitivité économique. Il est nommé ASTRID pour *Advanced Sodium Technological Reactor for Industrial Demonstration*.

Le niveau de sûreté accrue à atteindre dans le programme génération 4 nécessite l'élaboration de moyens instrumentaux destinés à la surveillance des barrières de confinement de la matière radioactive qui sont dans l'ordre : la gaine combustible, le circuit primaire, et l'enceinte du bâtiment réacteur. Si un relâchement mineur de matière radioactive est toléré dans les réacteurs à eau pressurisée (REP), une mise en contact du combustible avec le sodium caloporteur peut amener à la vaporisation de celui-ci, engendrant une perte de refroidissement, et pour cette raison, une atteinte à la sûreté du réacteur.

Garantir une fonction sûreté implique donc la mise en place d'instruments de surveillance que la conception du réacteur devra prendre en compte. C'est dans le cadre d'une surveillance des défauts d'étanchéité de la première barrière de confinement, à savoir la gaine combustible, que s'inscrivent ces travaux de thèse. Historiquement, deux fonctions complémentaires et indépendantes l'une de l'autre ont été dédiées à la surveillance et à la gestion de ces pertes d'étanchéité de la gaine. Il s'agit :

- Des fonctions de type « protection en régime transitoire » qui, en cas de dépassement d'un seuil de sûreté d'un paramètre physique, vont déclencher l'arrêt d'urgence pour remettre le cœur dans un état sûr.
- Des fonctions de type « surveillance en fonctionnement nominal », permettant de suivre l'évolution d'un paramètre physique jusqu'à atteinte d'un seuil d'alerte, où une action de l'opérateur devient nécessaire. C'est le cas de la surveillance des ruptures de gaine par la mesure du signal des gaz de fission au moyen d'une spectrométrie gamma.

Les systèmes de spectrométrie gamma historiques ont été compromis par la présence d'un bruit de diffusion Compton lié à l'activation du sodium caloporteur et de l'argon de couverture. Des lignes à retard d'une quinzaine de minutes ont alors été rendues nécessaires, afin de s'affranchir d'une partie de ce bruit. En plus d'augmenter le temps de réponse de la mesure, ces lignes entraînaient la désactivation d'isotopes d'intérêt de courte période, lesquels peuvent, nous le verrons plus loin dans ce manuscrit, renseigner sur une éventuelle mise en contact entre le combustible et le sodium dangereuse pour la sûreté du réacteur.

Au regard des exigences de sûreté fixées pour les RNR-Na, nous étudierons dans le cadre de cette thèse l'apport potentiel d'une spectrométrie gamma haute résolution et bas bruit Compton pour la problématique des ruptures de gaine dans les réacteurs rapides refroidis au sodium.

Cette thèse est construite autour de six chapitres :

- Le premier chapitre de ce manuscrit propose une description synthétique des principales caractéristiques de la technologie RNR-Na,
- Le deuxième chapitre sera consacré à la description des moyens instrumentaux historiques dédiés à la gestion des ruptures de gaine. Une feuille de route pour répondre à la problématique de la thèse sera ainsi proposée,
- Le troisième et le quatrième chapitre seront dédiés à la caractérisation du terme source par la mise en équation des différents phénomènes physiques régissant le comportement des gaz de fission dans un environnement type RNR-Na. Des activités des produits de fission attendues seront ainsi estimées,
- Le cinquième chapitre sera focalisé sur la conception d'un modèle numérique de système suppression Compton, sa validation expérimentale et son optimisation,
- Le sixième chapitre présentera la modélisation d'une mesure spectrométrique bas bruit Compton. L'apport d'une telle instrumentation dans le cadre d'une détection précoce des ruptures de gaine RNR-Na sera exposé.

La conclusion générale sera l'occasion de retracer la démarche suivie pour répondre à la problématique formulée, de souligner les principaux résultats de ces travaux à partir desquels des perspectives seront proposées.



# CHAPITRE I

## LES REACTEURS RAPIDES : ENTRE SURGENERATION ET FERMETURE DU CYCLE.

Ce chapitre commence par une revue de la place de l'énergie nucléaire au sein du parc énergétique mondial. Afin de relever les enjeux énergétiques et environnementaux actuels, les avantages des réacteurs à neutrons rapides seront présentés et discutés principalement autour de la filière sodium.

Marquée par des réalisations historiques avec le déploiement de Rapsodie, Phénix et Superphénix, la stratégie française s'est portée sur le développement de cette filière pour laquelle elle possède un retour d'expérience et une maturité significatifs. Après la fermeture brutale de Superphénix, la filière a subi deux avortements de projets au seuil de leur réalisation : l'EFR « *European Fast Reactor* » et, plus récemment, ASTRID « *Advanced Sodium Technological Reactor for Industrial Demonstration* ». Néanmoins, ils permirent à la France de maintenir et de faire progresser son expertise autour de cette technologie. Ainsi, quelles que soient les contraintes économiques et politiques, la France, convaincue du potentiel des RNR-Na, a toujours su garder un socle de compétences techniques à même d'assurer un redémarrage concret de la filière à tout moment. Après la décision d'abandonner la construction du réacteur en 2019, il subsiste d'ASTRID, un soutien R&D de la filière à neutrons rapides, cadre dans lequel s'insère ma thèse de doctorat.

Un nouveau surgénérateur de quatrième génération doit faire preuve d'une sûreté accrue par rapport à ses prédécesseurs et notamment sur les problématiques d'étanchéité des gaines. Ces problématiques sont englobées par le principe de « défense en profondeur » qui vise à garantir l'intégrité totale de la première barrière de confinement du combustible, à savoir la gaine des aiguilles combustibles.

## 1. Les systèmes nucléaires du futur

Plusieurs cadres de réflexion ont été entrepris afin de définir les systèmes nucléaires qui pourraient être déployés à l'horizon 2040 et pallier aux besoins énergétiques de demain. Parmi ceux-ci, et sous l'initiative de treize états membres, le forum international génération IV, noté GIF, a été lancé au début des années 2000 sous l'initiative du DOE (*Department Of Energy*) des Etats-Unis d'Amérique. Ce forum a pour objectif de catalyser les efforts mondiaux de recherche et de développement pour faire émerger les systèmes nucléaires du futur. Dans cette perspective, quatre critères de développement, fixés par la charte du GIF, doivent être respectés [2][3].

- **Sûreté** : en intégrant les enseignements post-Fukushima, ces réacteurs doivent au moins atteindre le niveau de sûreté de la troisième génération et réduire la probabilité des incidents et accidents nucléaires ; le cas échéant, d'en contenir les conséquences sur le site de l'installation,
- **Durabilité** : ces réacteurs doivent utiliser efficacement les ressources naturelles tout en respectant l'environnement et en minimisant la production de déchets radioactifs à vie longue,
- **Economie** : le coût de production doit être compétitif par rapport à celui des autres sources d'énergie,
- **Sécurité** : ces réacteurs doivent limiter la prolifération des armes nucléaires en brûlant les stocks de plutonium disponibles et résister aux attaques terroristes.

Au regard de ces critères, les travaux du GIF IV ont conduit à la sélection de six concepts de réacteurs jugés les plus prometteurs. Parmi eux, trois sont des réacteurs à neutrons rapides : RNR sodium, RNR gaz et RNR plomb, et les autres sont des réacteurs neutrons thermiques : réacteurs à très haute température (RTHT), à sels fondus (RSF) et à eau supercritique (RESC).

Fortement investi dans cette initiative, l'effort des acteurs français s'est concentré essentiellement sur les technologies de réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium (RNR-Na). Ce choix s'explique en premier lieu par un important retour d'expérience de cette filière, marqué par le déploiement de démonstrateurs RNR-Na comme Rapsodie, Phénix et Superphénix.

Par ailleurs, dans le cadre de la stratégie française sur la gestion durable des matières et déchets radioactifs, assignée par la loi Bataille (n° 91-1381), seuls ces réacteurs permettront d'utiliser efficacement les ressources naturelles par le multi-recyclage des stocks de plutonium issus des réacteurs à eau pressurisée. Ces réacteurs offrent, en outre, la possibilité de transmuter les déchets de haute activité à vie longue en éléments à vie plus courte ou stable, plus faciles à gérer.

Dans ce contexte, la France soutient des études de recherche et de développement sur les RNR-Na comme le témoigne l'investissement important qui fut engagé dans le projet ASTRID.

Les sections 2 et 3 de ce chapitre s'appuient essentiellement sur les ouvrages suivants [4]-[9], auxquels le lecteur pourra se référer pour plus de détails.

## 2. Les réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium

### 2.1. La genèse de la filière sodium en France

#### 2.1.1. Rapsodie : le premier RNR français

En France, le premier RNR-Na expérimental fut Rapsodie (Rapide-Sodium) situé à Cadarache. La construction de ce réacteur d'une puissance initiale de 20 Mégawatts thermiques (MWth) a commencé en 1962 pour une première divergence le 27 janvier 1967. Sa puissance initiale sera rapidement augmentée à 24 MWth puis, en 1970, celle-ci sera portée à 40 MWth après réaménagement du cœur (opération Fortissimo<sup>1</sup>).

La filière sodium française a beaucoup bénéficié du fonctionnement de ce réacteur. En effet, c'est sur Rapsodie que les grandes lignes de conception (assemblages, matériaux, cuve, échangeurs intermédiaires, thermocouples de surveillance des assemblages) ont été validées et maintenues dans les réacteurs suivants. C'est sur Rapsodie également que la capacité de surgénération des réacteurs à neutrons rapides a été démontrée.

Dès 1978, de nombreux incidents ont perturbé le bon fonctionnement de ce réacteur. Les réparations coûteuses et délicates, ainsi que la mise en service de Phénix, démarré en 1973, conduisent à l'arrêt définitif de Rapsodie le 15 avril 1983. La figure 1-1 illustre une vue de dessus du bouchon couvercle cœur de Rapsodie.

---

<sup>1</sup> Opération visant à accroître le flux neutronique pour se rapprocher des conditions de fonctionnement des réacteurs de grande puissance.



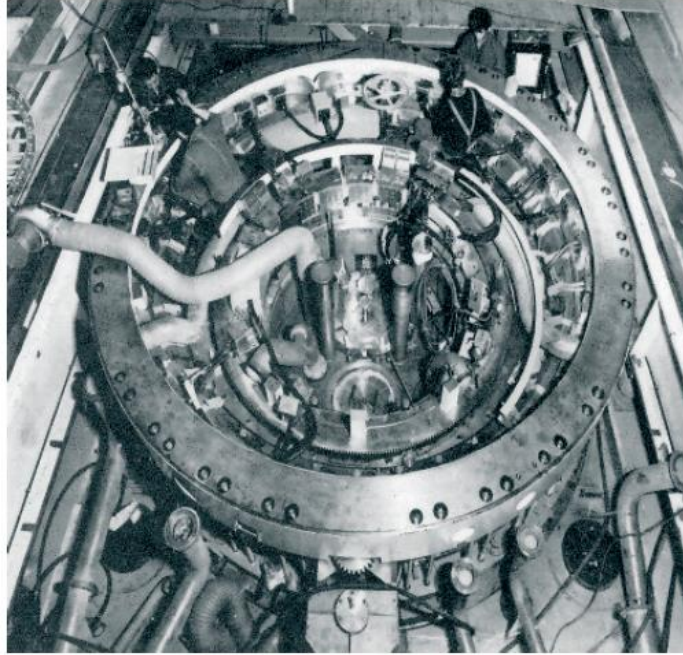


Figure 1-1: Vue de dessus des bouchons tournants du réacteur Rapsodie [10].

### 2.1.2. Phénix : un démonstrateur électrogène

La première divergence de Phénix a eu lieu le 31 août 1973 sur le site de Marcoule. Ce réacteur avait pour objectifs de poursuivre les travaux de recherche concernant l'acquisition des connaissances sur le fonctionnement des RNR-Na et de conforter les options à retenir pour son successeur Superphénix, déjà à l'étude. La figure 1-2 illustre une vue du bâtiment réacteur et la figure 1-3 une vue aérienne de la centrale Phénix.

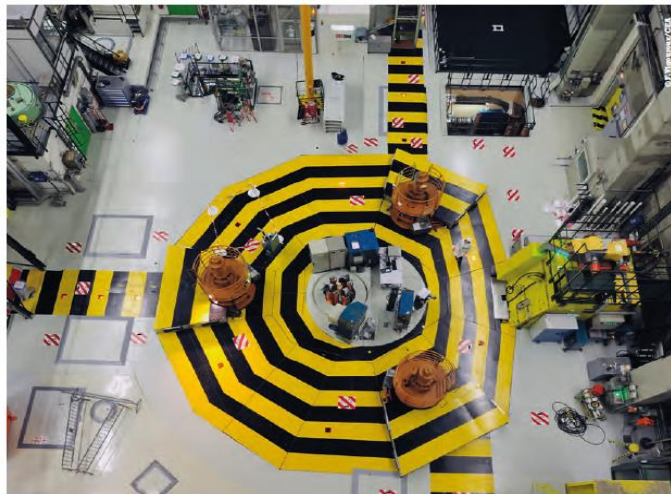


Figure 1-2 : Vue plongeante du bâtiment réacteur Phénix [10].



Figure 1-3 : Vue aérienne de la centrale Phénix (Photo CEA).

Avec une puissance électrique de 250 MWe (563 MWth), Phénix, relié au réseau le 13 décembre 1973, a démontré la viabilité industrielle de la filière et la capacité des opérateurs, en l'occurrence EDF et le CEA, à l'exploiter. La centrale s'est ensuite inscrite dans des programmes de recherche sur la gestion des déchets de haute activité et à vie longue pour démontrer la faisabilité de transmutation des actinides mineurs.

Le retour d'expérience accumulé sur les 35 années d'exploitation de la centrale Phénix a permis de comprendre un certain nombre de phénomènes et de mettre au point des solutions. Dans le cadre de ces études, il a été montré que les rejets radioactifs de la technologie RNR-Na sont extrêmement faibles avec une dosimétrie inférieure d'un facteur dix à celle du parc thermique constitué de Réacteurs à Eau Pressurisée (REP).

Après 24.44 milliards de kilowatts-heures délivrés au réseau EDF, Phénix a été retiré du réseau en mars 2009. Une dernière campagne d'essais, dits « ultimes », a eu lieu jusqu'en janvier 2010. L'objectif principal de ces essais était de recueillir un maximum d'informations sur la filière RNR-Na, afin de mieux préparer l'arrivée du futur démonstrateur ASTRID.

### 2.1.3. Superphénix : Phénix renaît-il vraiment de ses cendres ?

En 1970, l'Italie, l'Allemagne et la France se sont mis d'accord pour construire et exploiter en France un réacteur européen de type RNR-Na, nommé Superphénix. Démarré en septembre 1985 et fort du REX français sur cette technologie, Superphénix était le réacteur le plus abouti de cette filière avec une puissance électrique de 1240 MWe (3000 MWth). La vocation principale de ce projet a été de démontrer la faisabilité d'un RNR de taille industrielle et la maîtrise de la physique des grands cœurs.

Superphénix a été victime d'une pression politique et médiatique intense et connaîtra ainsi 54 mois de procédures administratives où le réacteur était mis à l'arrêt, contre 53 mois de réel fonctionnement. Finalement, Superphénix a été arrêté en 1997. Néanmoins, malgré son arrêt prématuré, ce prototype avait parfaitement intégré l'expérience des réacteurs Phénix et Rapsodie et avait permis de conforter la viabilité de cette filière et l'avance française dans cette technologie. A titre d'illustration, il y a eu trente-deux fuites sodium sur Phénix et seulement trois fuites recensées sur Superphénix.

La figure 1-4 montre une vue plongeante du dôme de Superphénix.

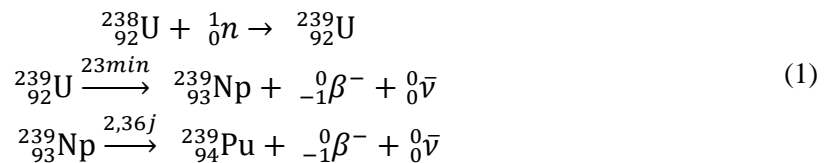


Figure 1-4 : Le dôme de Superphénix [10].

## 2.2. Intérêts des RNR-Na

### 2.2.1. Assurer une durabilité des ressources

Un réacteur à neutrons rapides peut produire davantage de combustible qu'il n'en consomme. Ce processus, appelé surgénération, est utilisé pour convertir la partie fertile de l'uranium naturel  $^{238}\text{U}$  en plutonium  $^{239}\text{Pu}$  fissile. La réaction de surgénération mise en jeu est explicitée selon l'équation (1) :



Cette réaction neurophage est possible, quel que soit le spectre neutronique incident. En revanche, pour consommer de la matière fissile sans nécessité de sur-enrichissement, le bilan neutronique doit être excédentaire. La condition est alors d'avoir un facteur de multiplication  $\mu$  (nombre de neutrons émis par fission pour un neutron absorbé) au moins égal à 2,3 se décomposant en : un neutron pour entretenir la réaction en chaîne, un neutron pour la transmutation de  $1^{238}\text{U}$  en  $^{239}\text{Pu}$  et 0,3 neutron pour compenser les pertes stériles dues à l'absorption des neutrons par la structure et/ou leur fuite hors du réacteur. Le tableau 1-1 présente les facteurs de multiplication de  $^{235}\text{U}$  et du  $^{239}\text{Pu}$  pour les spectres thermique et rapide.

Tableau 1-1 : Facteurs de multiplication des isotopes fissiles en spectre thermique et rapide.

radioélément	$\mu_{\text{thermique}}$	$\mu_{\text{rapide}}$
$^{239}\text{Pu}$	2,10	<b>2,40</b>
$^{235}\text{U}$	2,07	1,90

Seul le  $^{239}\text{Pu}$  en spectre rapide vérifie alors cette condition de surgénération.

Ainsi, un combustible constitué de mélange d'uranium et de plutonium avec un fort enrichissement en Pu ( $\approx 20\%$ ) donne un système produisant par régénération plus de matière

fissile qu'il n'en consomme. Grâce à ce processus, il est possible de consommer non seulement la partie fissile de l'uranium naturel, l' $^{235}\text{U}$ , mais également la totalité de l'uranium ( $^{238}\text{U}$ ) sans nécessité d'enrichissement. Néanmoins, cette approche est indissociable de la fermeture du cycle du combustible qualifié de transmutation/séparation où, à chaque cycle, le combustible est reconditionné après séparation radiochimique des isotopes. Cette fermeture de cycle ouvrirait une page nouvelle de l'histoire de l'industrie électronucléaire. Au sein d'une telle unité de production, la chaudière et l'usine de retraitement seraient intriquées pour assurer la durabilité de la ressource minérale, la minimisation des déchets à vie longue et la limitation du risque de détournement de la matière nucléaire.

Cela conduit ainsi à une économie des ressources répondant au critère de durabilité fixé pour les réacteurs de Génération IV.

### 2.2.2. Réduire la radiotoxicité des déchets radioactifs

La transmutation consiste à transformer des noyaux atomiques, dont la période de demi-vie est très longue (plusieurs centaines de milliers d'années), en éléments de période plus courte ou stables que sont les produits de fission. La transmutation se focalise aujourd'hui principalement sur les actinides mineurs à savoir le  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Am}$  et le  $^{244}\text{Cm}$  qui possèdent une radiotoxicité potentielle<sup>2</sup> élevée à long terme. A titre indicatif, le  $^{237}\text{Np}$  a une période de demi-vie d'environ 2140000 années.

En spectre thermique, les actinides mineurs sont des noyaux capturant de neutrons. Leur transmutation sera donc consommatrice de neutrons, ce qui nécessitera un sur-enrichissement du combustible en matière fissile. En revanche, ces noyaux possèdent une section efficace de fission plus importante en spectre rapide [11]. Par conséquent, la transmutation des actinides mineurs n'est réellement efficace que dans un spectre à neutrons rapides. La figure 1-5 présente le rapport entre les sections efficaces de fission et de capture des actinides mineurs pour la filière thermique et rapide.

---

<sup>2</sup> Produit de l'inventaire en radionucléides par le facteur de dose, il s'agit d'un indicateur du danger potentiel en cas d'ingestion.

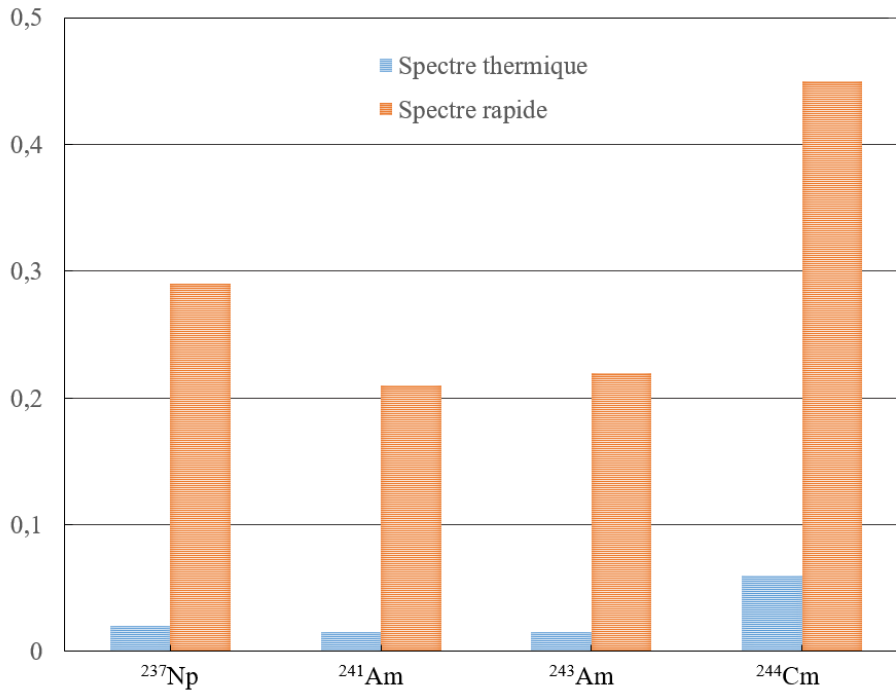


Figure 1-5 : Rapports des sections efficaces de fission sur capture des actinides mineurs [11].

Dans Phénix, la faisabilité de transmutation en mode hétérogène<sup>3</sup> a été démontrée lors de l'expérience ECRIX [12]. Il a été alors confirmé que l'on pouvait transmuter à 94 % une cible d'américium avec des neutrons rapides. Néanmoins, la transmutation à échelle industrielle, nécessite le déploiement de démonstrateurs de taille suffisante et une continuité des travaux de recherche et de développement.

## 2.3. Caractéristiques d'un réacteur à neutrons rapides

### 2.3.1. L'architecture d'un RNR-Na

Deux types d'architecture sont envisageables pour le circuit primaire d'un réacteur à neutrons rapides : « à boucles » et « intégré ». La figure 1-6 illustre l'architecture générale de ces deux concepts.

---

<sup>3</sup> Une transmutation où les actinides mineurs sont concentrés dans des assemblages spéciaux, séparés en périphérie du cœur.

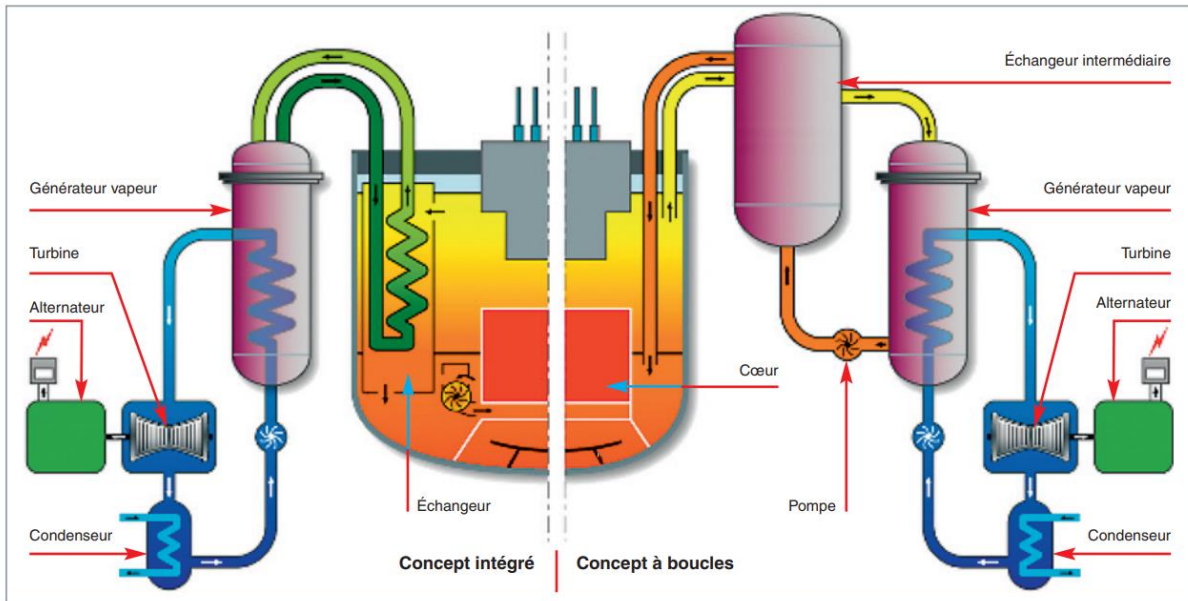


Figure 1-6 : Schéma de principe des architectures intégrée (à gauche) et à boucles (à droite) [13].

Dans un réacteur dit « **à boucles** », les pompes primaires et les échangeurs intermédiaires se trouvent à l'extérieur de la cuve primaire contenant le cœur. Par l'intermédiaire des tuyauteries primaires, le sodium circule donc en boucle reliant la cuve aux échangeurs de chaleur intermédiaires. Ce concept a été adopté par les projets japonais et par la plupart des petits réacteurs expérimentaux comme Rapsodie en France.

Dans un réacteur dit « **intégré** », l'ensemble du sodium caloporteur, les pompes primaires et les échangeurs intermédiaires sont intégrés dans la cuve. Cette architecture interdit toute circulation de sodium en dehors de la cuve, ce qui diminuera le risque de fuites de sodium primaire et favorisera la sûreté du réacteur. A l'état actuel des recherches, ce concept semble le plus adapté pour les RNR-Na de puissance. Il a été choisi pour Phénix et Superphénix en France, les réacteurs russes BN600 et BN350, et retenu pour le démonstrateur ASTRID.

### 2.3.2. L'aiguille et l'assemblage combustible

Quelle que soit l'architecture du réacteur RNR-Na, la conception du cœur doit maintenir une forte densité de puissance afin de compenser les faibles sections efficaces de fission par les neutrons rapides. Cette nécessité conduit alors à une conception de cœur sous forme de tubes hexagonaux fermés, formant lesdits assemblages. Chaque assemblage renferme un faisceau d'aiguilles combustibles espacées par un fil hélicoïdal. Ainsi, le fluide caloporteur peut circuler entre les aiguilles et extraire la chaleur produite par les réactions de fission. Toutefois, cette géométrie fermée peut, en cas de relâchement de matière fissile en dehors de la gaine, provoquer un bouchage partiel de l'assemblage pouvant se propager dans les assemblages voisins (cf. Section 3.3.3). A titre indicatif, le cœur de Phénix a été composé de 121 assemblages fissiles avec 217 aiguilles par assemblage. Au total, cela représente 26257 aiguilles de combustible qui ont toutes un risque potentiel de rupture [14].

La figure 1-7 représente un assemblage combustible type d'un RNR-Na.

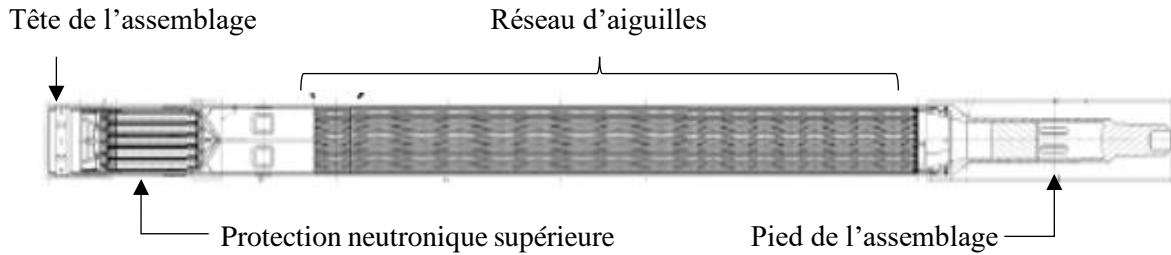


Figure 1-7 : Assemblage type d'un RNR-Na [15].

L'aiguille combustible est composée de pastilles cylindriques frittées, pleines ou annulaires, de diamètres variant entre 4 et 7 mm et contenant de l'oxyde combustible (généralement  $(U, Pu)O_2$ ). Des volumes libres supérieur et inférieur, initialement remplis d'hélium à la pression atmosphérique, sont destinés à recueillir les produits de fission gazeux relâchés par le combustible pendant l'irradiation. Les pastilles ainsi que ces volumes, appelés également chambres d'expansion, sont enveloppés par une gaine étanche, d'une épaisseur de l'ordre de 0,5 mm, constituant **la première barrière de confinement de la matière fissile**. Un jeu combustible/gaine d'environ 200 à 300  $\mu m$  est prévu afin d'anticiper les éventuelles évolutions géométriques du combustible sous irradiation. La figure 1-8 montre des exemples de conception d'aiguilles combustibles pour un RNR-Na.

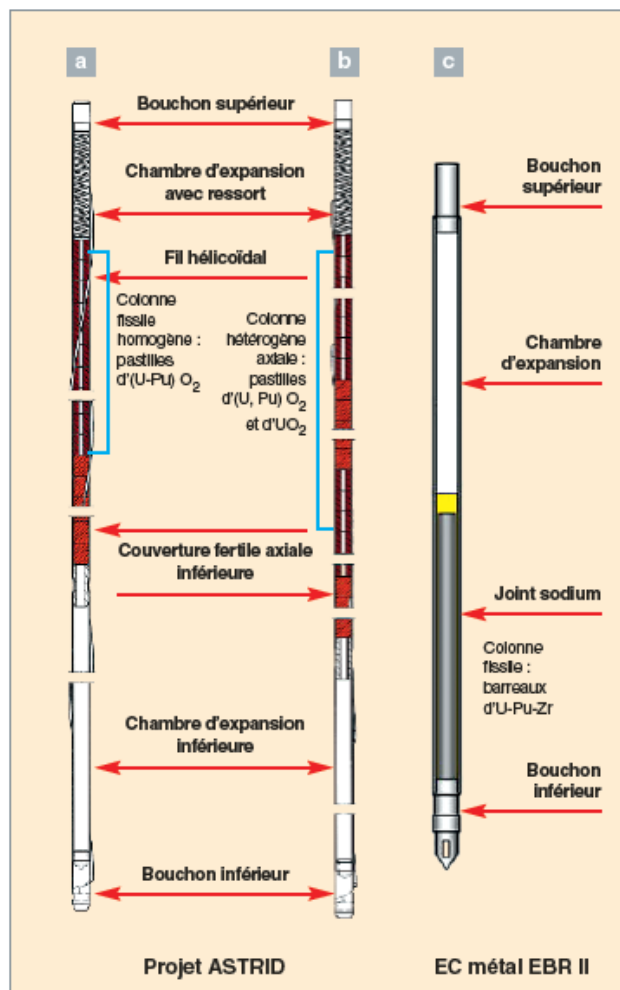


Figure 1-8 : Exemples d'aiguilles combustibles pour un RNR-Na [16].

### 2.3.3. Le caloporteur

Les réacteurs à neutrons rapides présentent la particularité d'avoir un cœur de faibles dimensions (compact) et des puissances spécifiques très élevées (centaines à milliers de kW par litre). Par conséquent, seuls les métaux liquides peuvent être utilisés et permettent d'atteindre de tels flux calorifiques. Parmi les métaux liquides disponibles, le sodium est un candidat privilégié de cette filière et se distingue par de nombreux atouts :

- **Propriétés thermiques** : il permet d'extraire des puissances spécifiques aussi élevées que 1000 à 2000 kW par litre. De plus, s'il n'est liquide qu'à 98°C, sa température d'ébullition est de 883°C à pression atmosphérique, ce qui offre un fonctionnement sur une large plage de température sans nécessiter de pressurisation,
- **Propriétés neutroniques** : le sodium présente une bonne transparence neutronique avec une probabilité de capture de 4,34 barns pour des neutrons rapides [11],
- **Abondance des ressources** : il est très répandu dans la nature et est obtenu par électrolyse du sel,
- **Peu corrosif** : le sodium interagit très peu avec la structure du réacteur.

Néanmoins, le sodium présente plusieurs inconvénients dont il faut se protéger. Nous citerons notamment :

- **Une forte réactivité chimique avec l'oxygène et l'eau** : cette réactivité peut conduire à des feux sodium au contact de l'air en cas de fuites hors cuve, ou à des explosions au contact de l'eau au niveau des générateurs de vapeur. Ce risque est tout de même minimisé par un renforcement des circuits primaires et secondaires en les rendant plus étanches et beaucoup plus résistants, notamment par la mise en place des structures intégrées du circuit primaire présentée précédemment. Par ailleurs, des travaux de recherche et de développement abordent la possibilité de supprimer le risque lié à la réaction eau-sodium par la mise en place d'un système alternatif et innovant de conversion énergie-gaz tel que le CO<sub>2</sub> supercritique [2].
- **Une affinité avec l'oxyde combustible** : en cas de rupture de gaine, le sodium peut pénétrer à l'intérieur de l'aiguille combustible et venir au contact de l'oxyde mixte pour former de l'urano-plutonate de sodium Na<sub>3</sub>(U,Pu)O<sub>4</sub>. Cette réaction chimique nécessite de l'oxygène qui sera fourni par le combustible pour s'entretenir. Au fur et à mesure que la réaction se développe, le rapport oxyde sur métal du combustible (O/M) diminue, ce qui entraîne une diminution de sa conductivité thermique pouvant induire un défaut de refroidissement et une atteinte à la sûreté du réacteur. Par ailleurs, la formation de ce composé, lequel possède une densité deux fois plus faible que le combustible, peut induire une expansion volumique de l'aiguille et des contraintes géométriques sur celle-ci. Enfin, l'urano-plutonate de sodium peut, tout simplement, se coincer entre les faisceaux d'aiguilles modifiant ainsi le débit de sodium et provoquer un défaut de refroidissement.
- **Un accroissement de la réactivité neutronique** lorsqu'il entre en ébullition. Ce problème peut être géré par un concept de cœur compensant cet effet. Nous aborderons ce point plus en détail dans la partie 3.3.2.



### 2.3.4. Instrumentation générale d'un RNR-Na

L'instrumentation générale du réacteur doit permettre de surveiller les grandeurs physiques du cœur et/ou de son environnement. Ce faisant, elle va permettre de limiter les conséquences des incidents<sup>4</sup> et/ou accidents<sup>5</sup> sur **la disponibilité et la maintenabilité** du réacteur (*cf.* Section 3.3.3). Dans le cadre des RNR sodium français, des développements ont été entrepris pour un certain nombre d'instruments [16][17]. Nous citerons, en particulier, les mesures suivantes :

- **Le contrôle thermique** représente une première maille de défense vis-à-vis de la détection d'un incident de type BTI « Bouchage Total Instantané ». Un grand nombre de capteurs (thermocouples, thermométrie ultrasonore, Fibre Optique à Réseau de Bragg) sont déployés et permettent de suivre le comportement thermique des assemblages au moyen d'une cartographie du cœur, afin de détecter de manière précoce toute anomalie de refroidissement du réacteur,
- **La détection acoustique** au niveau de la cuve primaire permet la détection précoce de phénomènes anormaux autres que le BTI (cavitation par exemple),
- **Les systèmes de mesure neutronique** « SMN » permettent de surveiller et contrôler la puissance du réacteur durant les différentes phases de fonctionnement (démarrage, transitoires, fonctionnement nominal, états d'arrêt et situations accidentelles). En complément des chambres utilisées pour la mesure du flux neutronique dans les précédents réacteurs, l'implantation de chambres à fission *in-core* associées à une chaîne grande dynamique [18] et de réactimètres ont été envisagés pour ASTRID, ce qui améliorerait la surveillance neutronique du réacteur,
- **Les systèmes de mesure d'étanchéité** « SME » permettent la détection et/ou la localisation d'une perte d'étanchéité d'une aiguille combustible, dite **rupture de gaine**. Celle-ci est caractérisée par le relâchement des produits de fission. Des prélèvements de sodium ou d'argon contenu dans le ciel de couverture<sup>6</sup> sont réalisés et analysés par divers instruments, tels que des chambres d'ionisation, des compteurs proportionnels à hélium 3, des spectromètres de masse ou encore des dispositifs de spectrométrie gamma.

La présente thèse se focalisera sur les systèmes de mesure d'étanchéité pour la problématique des ruptures de gaine. Dans le prochain chapitre, l'instrumentation historique pour le SME sera passée en revue et les améliorations technologiques proposées pour celle-ci seront exposées.

---

<sup>4</sup> Incidents : Evénements de niveaux 1 à 3 sans conséquence significative sur les populations et l'environnement [123].

<sup>5</sup> Accidents : Evénements de niveaux 4 à 7 comparables à l'accident de Tchernobyl [123].

<sup>6</sup> Partie supérieure de la cuve principale d'un RNR-Na située au-dessus du niveau libre du sodium.

### 3. Un cœur RNR-Na innovant à sûreté améliorée

#### 3.1. Le point sur le projet ASTRID

Les études du prototype technologique ASTRID ont été confiées au CEA en 2010, en réponse à la loi Bataille relative à la gestion durable des matières et déchets radioactifs. Ce réacteur de 600 MWe (1500 MWth) devait démontrer la viabilité de la filière RNR-Na en adoptant des solutions extrapolables à un réacteur de puissance industrielle (environ 1500 MWe à l'horizon 2040), notamment en matière de sûreté et d'opérabilité.

Durant l'été 2019, la décision d'arrêt du projet ASTRID est publiquement communiquée [19][20], reportant ainsi la perspective d'un développement industriel des réacteurs de 4<sup>ème</sup> génération à la deuxième moitié de ce siècle. Néanmoins, le CEA s'engage auprès des pouvoirs publics à présenter un programme de recherche sur cette filière pour 2020 et au-delà. Ce programme de continuité de recherche, cadre dans lequel s'insère les travaux de ma thèse, allie simulation et travaux expérimentaux et a pour vocation de maintenir l'expertise française sur les réacteurs rapides refroidis au sodium.

#### 3.2. Cœur à Faible Vidange « CFV »

Bien que le sodium soit maintenu en deçà de sa température d'ébullition, un accroissement local de la température peut apparaître lors d'un défaut de refroidissement (*cf.* section 2.3.3). Lors d'une telle occurrence, l'équilibre de la réactivité neutronique d'un cœur RNR-Na est perturbé. Deux composantes antagonistes s'opposent. La première favorise l'augmentation de la réactivité en conséquence du plus faible ralentissement des neutrons (durcissement du spectre neutronique). La deuxième composante favorise la perte de réactivité en raison de l'augmentation des fuites de neutrons hors du cœur. Or, ces fuites neutroniques, contrebalançant l'accroissement de réactivité, sont d'autant plus importantes que la taille du cœur est petite. Des réacteurs de petite taille ne présentent donc pas de risque en cas d'ébullition du sodium. *A contrario*, dans un cœur de plus grand volume comme c'est le cas d'un démonstrateur industriel comme ASTRID, une augmentation de la réactivité advient et constitue par conséquent une atteinte à la sûreté du réacteur.

Vis-à-vis des exigences établies par le Forum GIF IV, ce risque n'est pas admissible et un nouveau concept de cœur RNR-Na, dit Cœur à Faible Vidange « CFV », a été breveté en 2010 par des ingénieurs chercheurs du CEA. Ce concept de cœur, retenu pour ASTRID, est en rupture technologique avec les réacteurs antérieurs de la filière sodium. L'enjeu était de développer **un cœur dont la réactivité diminue naturellement** en cas de perte de refroidissement, jusqu'à l'arrêt total des réactions nucléaires et la remise du réacteur dans un état « sûr ».

Dans un cœur de type CFV [21], la composante de fuite est favorisée en cas de vidange de sodium, par la mise en place d'un cœur à géométrie variable et des hauteurs de zones combustibles différentes au centre et à la périphérie. La figure 1-9 montre une coupe axiale du concept CFV.

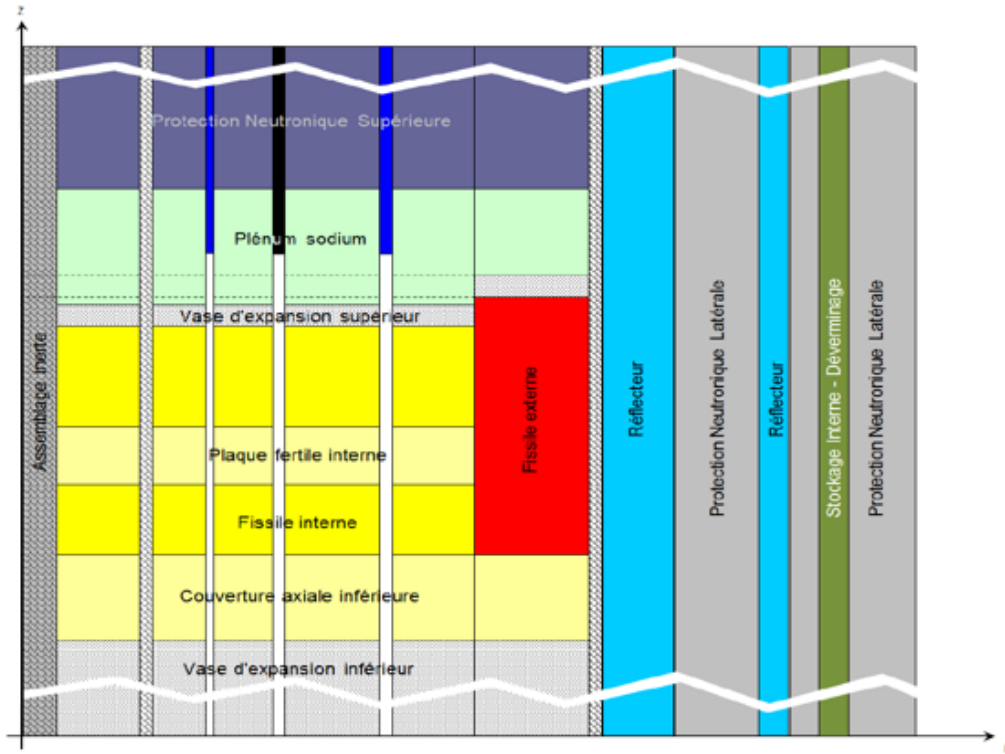


Figure 1-9 : Coupe axiale d'une géométrie cœur CFV [15].

Des études de simulations neutroniques et d'optimisation des paramètres géométriques ont permis de valider le concept CFV en montrant son comportement naturel en situation de perte de débit primaire [22][23].

### 3.3. Analyse de sûreté d'un RNR-Na

Suite à un ou plusieurs événements, tout cœur de réacteur (toute génération confondues) est sujet à modification entraînant son passage d'un régime nominal de fonctionnement à un régime transitoire de puissance et de température défini par une séquence incidentelle ou accidentelle. Afin de maîtriser au mieux ces risques, le concept de défense en profondeur a été introduit :

*'La défense en profondeur vise à mettre en place plusieurs lignes de défenses successives permettant une prévention efficace des dégradations et une limitation de leurs conséquences éventuelles. Elle garantit l'intégrité de trois barrières de confinement que sont la **gaine combustible**, le circuit primaire, et l'enceinte du réacteur', IRSN [24].*

Dans l'analyse de sûreté d'un RNR-Na, **deux catégories d'accidents** [17][25][26] sont étudiées :

## Chapitre 1 - Les réacteurs rapides entre surgénération et fermeture du cycle

- Un accident lié à un défaut de refroidissement du cœur :
  - Global, conduisant à une **fusion généralisée** du cœur, par exemple, à la suite d'un arrêt des pompes primaires et une perte d'alimentation du sodium primaire,
  - Local, de type **BTI** (Bouchage Total Instantané), conduisant à l'annulation instantanée du débit de refroidissement par le sodium d'un assemblage. Ce dernier pourrait, dans un second temps, se propager dans les assemblages voisins et risquerait de conduire à une fusion globale du cœur.
  
- Un accident lié à l'insertion de réactivité :
  - **Par vidange du sodium du cœur** : ce phénomène est particulièrement important pour les cœurs homogènes de grande taille,
  - **Par RIB** (remontée intempestive d'une ou plusieurs barres de commandes) : une remontée de barre se traduit par une augmentation de la puissance locale et une élévation de la température dans les assemblages voisins. Une RIB incontrôlée peut amener à une fusion du combustible à l'intérieur des aiguilles. Si une rupture de gaine intervenait au même moment, une sortie du combustible fondu conduirait à un BTI,
  - **Par compaction du cœur** : une compaction soudaine du cœur peut conduire à un apport de réactivité important. Il est donc primordial de surveiller et contrôler le diamètre du cœur, afin de vérifier sa compacité.

Afin de prévenir d'éventuels incidents/accidents, ou le cas échéant d'en contenir les conséquences sur site, le principe de défense en profondeur prévoit l'instauration de deux fonctions complémentaires et indépendantes l'une de l'autre [17]. Il s'agit :

- Des fonctions de type « protection en régime transitoire » qui, en cas de dépassement d'un seuil de sûreté d'un paramètre physique, vont déclencher des actions de sûreté pour remettre le cœur dans un état sûr. C'est notamment le cas des dispositifs de suivi de ruptures de gaine par détection des neutrons différés que nous décrirons dans le chapitre suivant.
- Des fonctions de type « surveillance en fonctionnement nominal » permettant de suivre l'évolution d'un paramètre physique jusqu'à atteinte d'un seuil d'alerte où une action de l'opérateur devient nécessaire. C'est le cas de surveillance des ruptures de gaine par la mesure du signal des gaz de fission au moyen d'une spectrométrie gamma. Les travaux de ma thèse s'inscrivent spécifiquement dans ce cadre.

Ces deux fonctions complémentaires permettent toutes les deux de garder le réacteur dans un état sûr et, pour la deuxième, d'améliorer sa disponibilité. En effet, un arrêt provoqué par la première fonction, suite à une rupture signalée, peut être très pénalisant pour l'exploitant.

Garantir ces fonctions implique la mise en place de moyens instrumentaux que les concepteurs du réacteur devront prendre en compte.

## 4. Conclusion

Les réacteurs à neutrons rapides sont une solution technologique répondant à la croissance des besoins énergétiques, à la pérennisation des ressources, à la lutte contre la prolifération des armes nucléaires et au respect de l'environnement. Des objectifs pour un nucléaire durable qui prend sa part dans le mix énergétique ont été définis par le forum international GIF IV.

Outre les progrès faits sur la conception du cœur CFV pour la maîtrise de la réactivité en situation accidentelle, des exigences de sûreté et de disponibilité sont fixées pour les RNR-Na et impliquent, entre autres, une surveillance fine de tout défaut d'étanchéité de la première barrière de confinement, à savoir la gaine combustible. La détection de ces ruptures de gaine à un stade précoce permettrait à l'exploitant de mieux en apprécier la nature, d'en prévoir l'évolution et de juger de l'opportunité d'un éventuel retrait. Le prochain chapitre sera donc l'occasion de répondre aux questions suivantes : Qu'est-ce qu'une rupture de gaine ? Quelles sont ses origines et ses cinétiques d'évolution ? Comment l'instrumentation historique gère-t-elle ces ruptures ? Et quelles voies d'étude explorerons-nous dans le cadre de cette thèse afin d'améliorer l'instrumentation existante ?

## CHAPITRE II

### LA GESTION DES RUPTURES DE GAINÉ DANS LES RNR-NA

Après avoir souligné l'importance du suivi des ruptures de gainé pour satisfaire aux exigences de sûreté et de disponibilité d'un RNR-Na, nous nous intéressons dans ce chapitre à la typologie de ces ruptures, à leurs causes et plus particulièrement à leur gestion. Ainsi, une étude bibliographique basée sur le retour d'expérience de l'instrumentation pour la détection des ruptures de gainé sera exposée. Les enseignements tirés de cette étude permettront de définir les voies d'amélioration et formuler la problématique de la thèse.

## 1. La phénoménologie de rupture de gaine

### 1.1. La gaine, son rôle, sa vie

Les principaux rôles d'une gaine de combustible nucléaire sont de : contenir le gaz de remplissage dans les chambres d'expansion, recueillir les gaz de fission produits lors de l'irradiation et séparer la matière fissile du caloporteur sodium [27]. Durant son séjour en réacteur, cette gaine est sujette à de nombreuses transformations à la fois thermiques, mécaniques et physiques. A haut taux de combustion, la principale contrainte sur la gaine provient de la formation d'une couche de composés oxydés de produits de fission (particulièrement du  $\text{Cs}_2\text{MoUO}_4$ ). Cette couche, plus connue sous le nom de JOG (Joint Oxyde Gaine), tend à augmenter la corrosion de la gaine, à exercer une poussée interne contre la gaine et à modifier localement la conductivité thermique [28]. Parallèlement, le fort gradient thermique du combustible conduit à un relâchement très important des gaz de fission dans les chambres d'expansion et, par conséquent, une pressurisation interne de celles-ci (quelques dizaines de bars) [29]. La combinaison de ces phénomènes, auxquels peuvent s'ajouter les défauts initiaux de fabrication et de soudure, tend à augmenter le risque d'apparition des ruptures dans les gaines des aiguilles combustibles.

### 1.2. Classification des ruptures de gaine

Une rupture de gaine est une perte d'étanchéité de la première barrière de confinement du combustible, impliquant une mise en contact du combustible avec le fluide caloporteur. Quelle que soit la cause de ces ruptures, celles-ci peuvent être classées en trois catégories [27]:

- Les pertes d'étanchéité ou **fissures/ruptures acceptables** : ces ruptures, sans conséquence majeure sur la sûreté du réacteur, se caractérisent par le relâchement des produits de fission gazeux, à savoir les isotopes du xénon et du krypton initialement contenus dans les chambres d'expansion.
- Les pertes d'étanchéité ou **ruptures étroites** indésirables : ces ruptures peuvent entraîner une pollution dangereuse du cœur suite à la mise en contact du sodium avec le combustible. Elles se caractérisent par le relâchement de produits de fission émetteurs de neutrons retardés, à savoir les isotopes d'iode et de brome. L'arrêt d'urgence du réacteur est actionné par le dépassement du seuil du signal induit par ces précurseurs de neutrons retardés. Cette occurrence pénaliserait fortement la disponibilité du cœur et remettrait même en question son redémarrage.
- Les **ruptures larges** critiques : ces ruptures sont caractérisées par le relâchement de la matière fissile et le risque de fusion en cas de bouchage devient significatif.

Le retour d'expérience de la filière RNR-Na montre que l'évolution d'une rupture de gaine est, le plus souvent, jalonnée par des phases caractéristiques [30], en rapport avec des phénomènes physiques mis en jeu. Ainsi, on distingue :

- Une première phase  $t_1$  correspondant au début du fonctionnement normal en absence de rupture,
- Une deuxième phase  $t_2$  se caractérisant par le relâchement des **produits de fission gazeux** (fissure acceptable),
- Une troisième phase  $t_3$  correspondant à l'apparition des premiers signaux des produits de fission **émetteurs de neutrons retardés** indiquant que le sodium est entré en contact avec l'oxyde combustible : c'est la phase de la rupture étroite indésirable,
- La dernière phase  $t_4$  signe l'atteinte du seuil fixé sur la base des signaux de neutrons retardés et le déclenchement de l'arrêt d'urgence.

Au-delà de la phase  $t_4$ , le relâchement de la **matière fissile solide** devient significatif.

Les temps caractéristiques de ces phases sont très variables et peuvent aller de quelques minutes à plusieurs centaines de jours [29].

### 1.3. Architecture du système de mesure de la contamination du caloporteur sodium

Dans le cas où une rupture de gaine ne peut pas être empêchée, le principe de défense en profondeur prévoit de détecter et localiser l'assemblage portant l'aiguille défectueuse et de suivre son évolution, jusqu'à l'atteinte d'un seuil au-delà duquel il est nécessaire de retirer l'assemblage défaillant. L'instrumentation historique prévue pour ce diagnostic peut être classée en deux catégories :

- La DRG-LRG gaz pour la détection et la localisation des fissures caractérisées par le relâchement des gaz de fission,
- La DRG-LRG sodium pour la détection et la localisation des ruptures étroites caractérisées par le relâchement des produits de fission émetteurs de neutrons retardés.

Ces deux catégories d'instrumentation seront présentées sous forme de synthèse bibliographique basée principalement sur le retour d'expérience des RNR Phénix et Superphénix mais aussi sur des études plus récentes concernant le développement actuel des RNR-Na.

## 2. Retour d'expérience sur l'instrumentation DRG-LRG gaz

Pour chaque fission d'atome de plutonium, en moyenne, 26% des atomes créés sont des produits de fission gazeux (**xénon et krypton**) [31]. La mise en évidence d'un défaut d'étanchéité à un stade précoce passe donc par la détection de ces gaz de fission. Ces derniers, initialement recueillis dans les chambres d'expansion, sont relâchés en cas de fissure de la gaine. Leur analyse se fait alors selon ces méthodes :

- Par prélèvement du gaz de couverture, c'est la **DRG gaz de couverture**,



- Par prélèvement généralisé dans le sodium primaire *via* le BCC et dégazage de celui-ci, c'est le principe de **DRG gaz**.
- Par prélèvements localisés dans le sodium primaire *via* le BCC et dégazage de celui-ci, c'est le principe de la **LRG gaz**.

Si le signal dépasse un seuil prédéfini pour les DRG gaz, la LRG gaz prend le relais pour une localisation de l'assemblage défectueux *via* un balayage de tous les assemblages.

## 2.1. Détection des ruptures de gaine DRG gaz

Le système de prélèvement de l'argon de couverture est quasi-semblable dans tous les démonstrateurs français de la filière RNR-Na. Le gaz de couverture (argon), prélevé par l'intermédiaire de deux systèmes analogues de prélèvements, est acheminé jusqu'à un pot d'épuration régénérable constituant une barrière pour les aérosols de sodium. Deux prélèvements doivent être réalisés afin que chaque pot soit régénérable indépendamment de l'autre. A la sortie de chaque pot, l'argon est aspiré puis acheminé dans des tuyauteries qui le distribuent sur les différents appareils de mesure [32]. La figure 2-10 illustre le module de prélèvement DRG gaz de Superphénix.

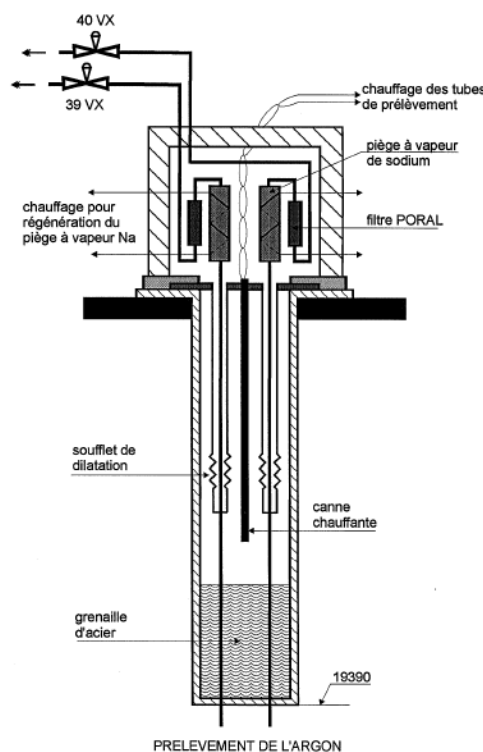


Figure 2-10 : Module de prélèvement d'argon de Superphénix [33].

## 2.2. Localisation des ruptures de gaine LRG gaz

Comme son nom l'indique, la fonction LRG gaz a pour rôle de localiser les ruptures de gaine laissant échapper des produits de fission gazeux [14][32][33]. Cette fonction a été mise en œuvre uniquement sur le réacteur Phénix. Elle est basée sur un prélèvement continu du sodium primaire, en sortie des 121 assemblages, *via* l'utilisation du Bouchon Contrôle Cœur (BCC). Ce bouchon, représenté sur la figure 2-11, est relié à un bouchon auxiliaire (bouchon DRG) qui contient un sélecteur basé sur le principe de plateaux rotatifs. Il permet d'effectuer à la demande :

- Un prélèvement de sodium représentatif de tous les assemblages cœur « GN »,
- Un prélèvement d'un ensemble de trois assemblages situés à 120° degrés les uns par rapport aux autres « G3 »,
- Un prélèvement assemblage par assemblage « G1 ».

La fraction prélevée correspond à 1% de sodium ayant transité dans tout le cœur pour le mode GN ou dans trois assemblages sélectionnés pour le mode G3.

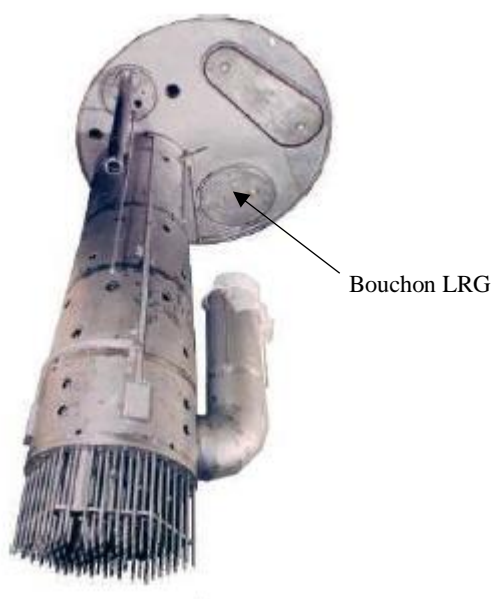


Figure 2-11 : Emplacement du bouchon LRG sur le bouchon contrôle cœur BCC du réacteur Phénix [32].

La fraction de sodium prélevée passe tout d'abord au travers d'un bloc de mesure des neutrons retardés (DND), décrit en Section 3.3. À la sortie de ce bloc, le sodium traverse une boîte de dégazage où circule un gaz vecteur d'argon. La circulation à contre-courant de ce gaz entraîne les molécules gazeuses contenues dans le sodium primaire. Le sodium alors épuré retourne en partie vers la cuve du réacteur par gravité. L'argon, par analogie avec le système DRG gaz, passe ensuite par le pot d'épuration régénérable, dans un pré-filtre en laine d'acier, puis dans un filtre poral nécessaire pour piéger les aérosols de sodium, avant d'être distribué dans les différents appareils de mesure. La figure 2-12 décrit le mécanisme LRG gaz de Phénix.

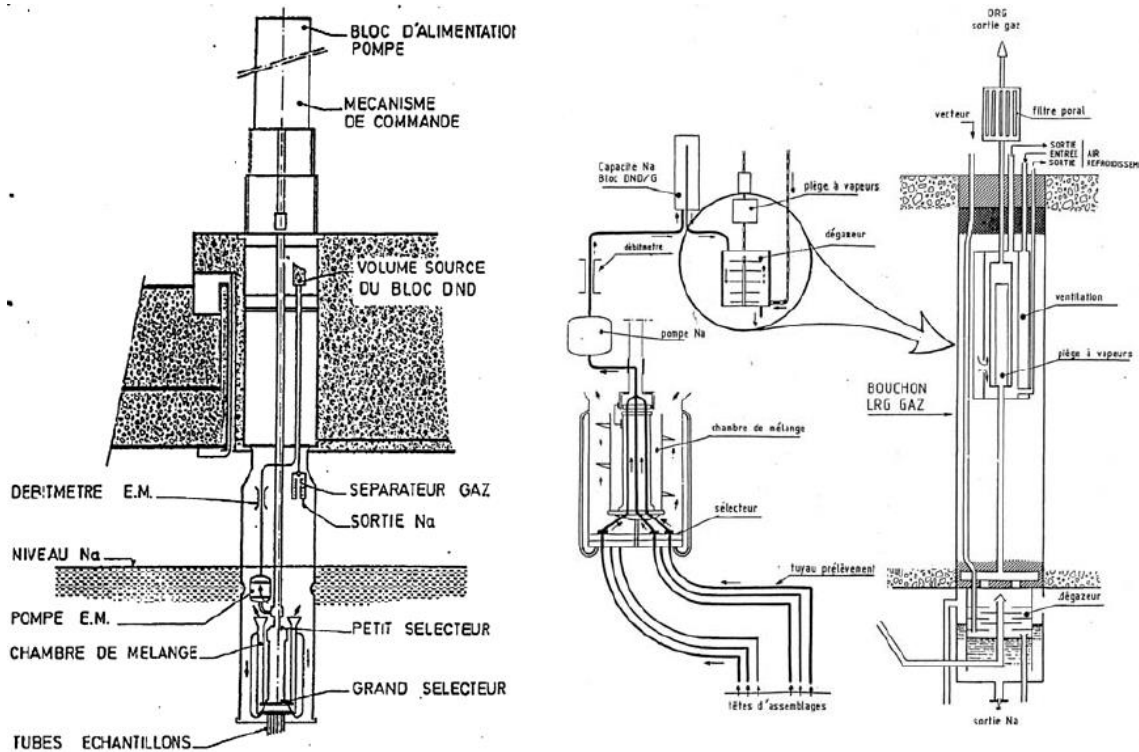


Figure 2-12 : Schéma de principe de LRG gaz de Phénix [33].

### 2.3. Instrumentation de mesure pour la DRG-LRG gaz

Sur la base de la fraction prélevée, trois types de mesures distinctes sont effectuées :

- **Une mesure globale** : elle a pour but d'évaluer en continu l'activité totale de l'argon de couverture. Cette mesure est réalisée à l'aide de **chambres d'ionisation à circulation** assurant une surveillance du signal fourni en délivrant un courant électrique fonction des désintégrations  $\beta$  et  $\gamma$  du gaz,
- **Une mesure sélective par spectrométrie de masse** : elle permet de quantifier la concentration de certains isotopes stables du xénon et du krypton. En amont du dispositif de mesure, une séparation des gaz rares de fission, produits en faible quantité et de l'argon, prélevé en grande quantité, est réalisée par chromatographie et piégeage cryogénique [14]. En cas de perte d'étanchéité, le rapport de concentration entre les gaz rares stables et radioactifs permet de pré-localiser l'assemblage fuyard par l'évaluation du taux de combustion,
- **Une mesure sélective par spectrométrie gamma** : elle permet quant à elle, de faire une analyse isotopique des gaz de fission radioactifs, responsables de l'évolution du signal dans une des chambres d'ionisation. Cette mesure, assurée par un spectromètre, permet de détecter et de suivre l'évolution de toute rupture de gaine donnant lieu à un relâchement de produits de fission gazeux.

La figure 2-13 illustre l'instrumentation générale DRG-LRG de la centrale Phénix :

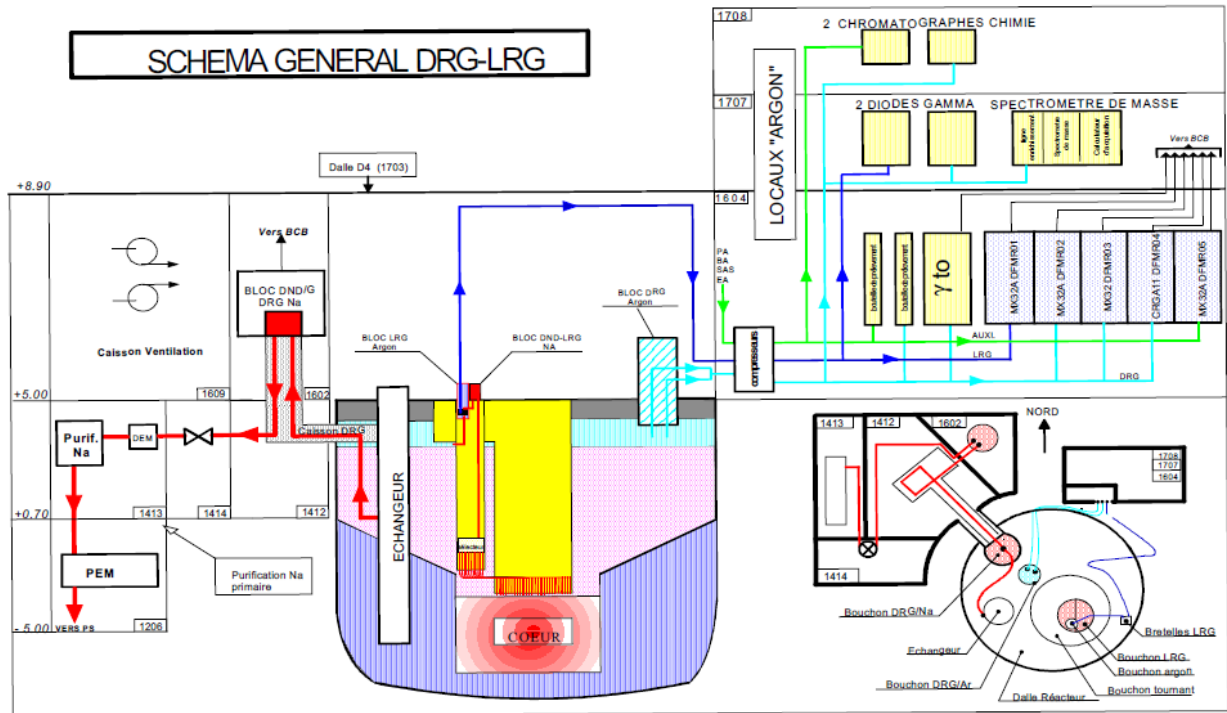


Figure 2-13 : Les systèmes DRG-LRG de la centrale Phénix [32].

## 2.4. Bruit de fond de la mesure

Les performances des systèmes de détection de rupture de gaine dépendent en grande partie du bruit de fond vu par les détecteurs en l'absence de rupture de gaine. Dans le cadre de la DRG-LRG gaz [14][32], les composantes du bruit de fond sont les suivantes :

- **L'argon 41**, d'une période de demi-vie de 110 minutes, est produit par activation de la fraction dissoute de l'argon de couverture dans le sodium, suivant la réaction de capture radiative :  $^{40}\text{Ar} (n, \gamma)^{41}\text{Ar}$ . Il est émetteur de particules  $\beta^-$  avec une énergie moyenne de 464 keV et de rayonnements  $\gamma$  à une énergie caractéristique de 1294 keV,
- **Le néon 23**, d'une période de demi-vie de 37,2 secondes, est produit par activation du sodium  $^{23}\text{Na} (n, p)^{23}\text{Ne}$ . Il est émetteur de particules  $\beta^-$  avec une énergie moyenne de 1898 keV et de rayonnements  $\gamma$  à une énergie caractéristique de 440 keV.
- **Le fluor 20**, d'une période de demi-vie de 11 secondes, est produit par activation du sodium  $^{23}\text{Na} (n, \alpha)^{20}\text{F}$ . Il est émetteur de particules  $\beta^-$  avec une énergie moyenne de 5391 keV et de rayonnements  $\gamma$  à une énergie caractéristique de 1634 keV. Nous noterons que sa présence dans le circuit de dégazage est peu probable en raison de son affinité chimique avec le sodium.

## 2.5. Retour d'expérience sur la DRG-LRG gaz

Jusqu'aux années 1990, la mesure isotopique a été assurée par des gamma-chromatographe utilisant un cristal d'iodure de sodium (NaI). Afin de s'affranchir de la mauvaise résolution de ce détecteur (7,5 % à 662 keV), il a été nécessaire de séparer le mélange des gaz xénon, krypton

et argon par chromatographie. L'arrivée des détecteurs HPGe, dotés d'une meilleure résolution (0,3 % à 662 keV) a permis de s'affranchir de cette phase de séparation chromatographique. La mise en place de ce remplacement a permis également de réduire le temps de cycle de la mesure spectrométrique de 10 à 5 minutes pour la DRG gaz [31][33].

La spectrométrie de masse, bien que testée sur Rapsodie, fut rapidement abandonnée en raison de la complexité de son déploiement sur des réacteurs de puissance comme Phénix et Superphénix. Destinée au départ pour la localisation des assemblages dont l'isotopie du gaz de remplissage servait de code barre pour réaliser la fonction LRG, cette technique a révélé un cycle de mesure d'environ 1h50. D'autres raisons incluant son coût et sa sensibilité de mesure ont également restreint son déploiement sur des grands réacteurs [25][34].

Dans le cadre de Phénix, il a été relevé que l' $^{41}\text{Ar}$  est moindre dans le prélèvement de la ligne LRG gaz que dans le ciel de couverture avec un rapport de  $1/10^{\text{ème}}$  [14][33]. En revanche, la concentration en  $^{23}\text{Ne}$  sur un prélèvement sodium est dix fois plus importante que dans le ciel de couverture. Cette contrainte a conduit à mettre en place des **lignes à retard** afin qu'il se désactive naturellement. **Ces lignes sont de 10 minutes pour la DRG gaz et 15 minutes pour la LRG gaz** [14].

Contrairement au  $^{23}\text{Ne}$ , aucune contre-mesure n'a été mise en place pour la réduction du bruit engendré par l' $^{41}\text{Ar}$  qui présente une période de 110 minutes. En effet, ce dernier ne perd que 7 % de son activité dans les lignes à retard mises en place pour la décroissance du  $^{23}\text{Ne}$ .

L'instrumentation historique pour le suivi isotopique présente, d'une part, **un temps de réponse** d'au moins 15 minutes pour la DRG gaz (lignes à retard et acquisition), sans gestion du bruit engendré par l' $^{41}\text{Ar}$  (concentration dix fois plus importante que pour la LRG gaz). D'autre part, un temps de réponse total d'environ 20 minutes a été calculé pour le circuit LRG gaz [14].

Le temps de réponse d'un tel système est à considérer avec la plus grande attention car, outre le problème de délai entre ce qui se passe dans le cœur et ce que l'on mesure, l'allongement du temps de réponse détruit une partie de l'information utile portée par les produits de fission à vie courte.

### 3. Retour d'expérience sur l'instrumentation DRG-LRG sodium

L'objectif de cette instrumentation est d'établir une relation entre la mesure neutronique et la gravité d'une rupture étroite indésirable. Sur la base d'un prélèvement de sodium, la concentration des produits de fission émetteurs de neutrons retardés peut être suivie de deux manières :

- Par analyse d'un échantillon de sodium circulant dans le cœur, c'est le système **DRG sodium**,
- Par analyse d'un échantillon de sodium représentatif du sodium circulant dans un regroupement d'assemblages, c'est le dispositif **LRG sodium**.

### 3.1. Détection des ruptures de gaine DRG sodium

Dans le cadre de Phénix, le prélèvement de sodium primaire pour la DRG sodium se fait au niveau des six échangeurs intermédiaires. Chaque ligne de prélèvement, sous forme de trident au départ, assure un prélèvement de 0,05 % du sodium circulant dans le cœur [33]. Une longueur des lignes de prélèvement et un débit de pompes équivalent impliquent un temps de transit d'environ 24 secondes sur les six circuits. Chaque ligne de prélèvement rejoint son volume de mesure pour la détection d'éventuels neutrons retardés dit DND (*Delayed Neutron Detection*), dont la sortie se déverse dans une ligne de retour commune aux six circuits de départ. La figure 2-14 illustre ce mécanisme de prélèvement :

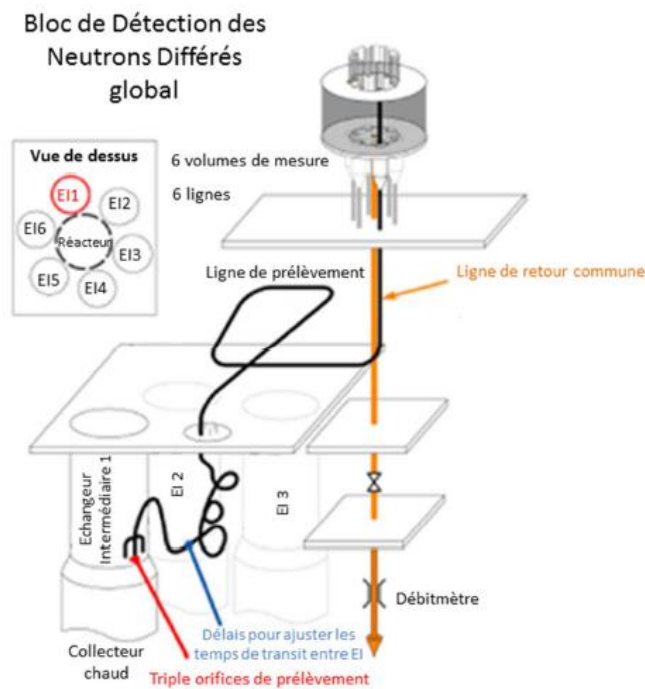


Figure 2-14 : Module de prélèvement pour la DRG sodium de Phénix [33].

Au titre de la défense en profondeur, un autre système de mesure pour la DRG sodium, dit DND intégrée, a été testé sur Superphénix et activement étudié dans le projet ASTRID [35]. Son principe repose sur le comptage au sein même du caloporteur sodium des neutrons émis par les produits de fissions présents dans le collecteur chaud du réacteur. Dans un premier temps, les motivations de la DND intégrée résident dans la diminution du temps de réponse (environ 6 secondes) tout en limitant la circulation de sodium primaire hors cuve. Dans un second temps, ces modifications entraînent une diminution des coûts et une facilité d'implantation des détecteurs. La DND intégrée a été installée à titre expérimental sur Superphénix et a mis en œuvre 11 chambres à fission haute température de type CFUC06 (fabriquées par Photonis). Ces détecteurs, introduits dans des doigts de gants autour des échangeurs intermédiaires, ont parfaitement fonctionné même sous des flux gamma supérieurs à  $10^5 \text{ Gy.h}^{-1}$ .

### 3.2. Localisation des ruptures de gaine LRG sodium

De la même manière que pour la LRG gaz, la fonction LRG sodium de Phénix utilise le BCC comme point de prélèvement. Des prélèvements de sodium en mode « G3 » ou « GN » arrivent alors au niveau des blocs DND où sont logés six compteurs  $^3\text{He}$  regroupés en deux voies de trois et une voie de six. Cette redondance a été choisie car ce dispositif est important pour la sûreté et déclenche l'arrêt d'urgence en cas de dépassement de seuil DND. Quand la LRG gaz localise une fissure pouvant potentiellement évoluer, la LRG sodium va surveiller prioritairement l'assemblage défectueux. Quand une rupture de gaine atteint un signal seuil DND jugé critique, l'arrêt d'urgence est automatiquement déclenché.

Sur Superphénix, la LRG sodium est basée sur une approche modulaire avec six modules DND n'intégrant qu'un seul compteur  $^3\text{He}$ , et chaque module permet de scruter 1/6<sup>ème</sup> du cœur. La figure 2-15 illustre le mécanisme de localisation par approche modulaire de Superphénix.

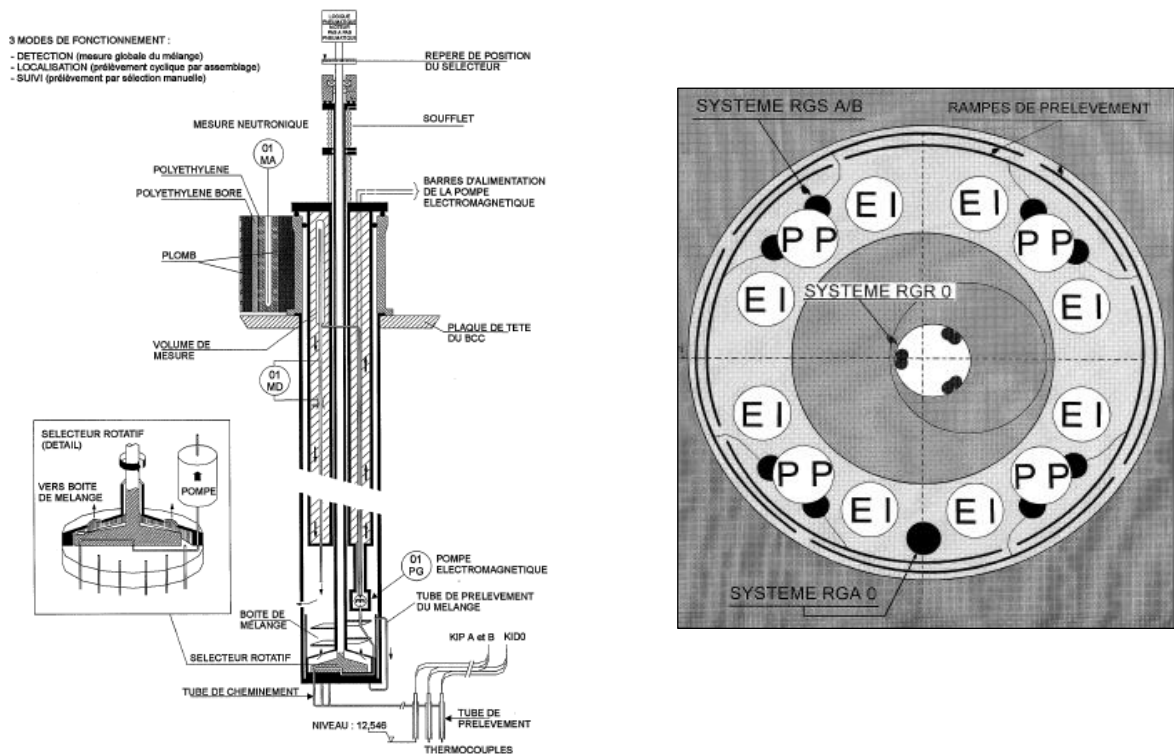


Figure 2-15 : Système de localisation LRG sodium de Superphénix [36].

### 3.3. Instrumentation de mesure DRG-LRG sodium

Le système DND global comporte, en plus du pot central, six pots de mesure séparés par une étoile en graphite. Celle-ci sert à réfléchir les neutrons, afin de focaliser le flux neutronique d'un pot vers son groupe de mesure composé de 2 compteurs proportionnels  $^3\text{He}$ . Ce principe, utilisé sur Superphénix, limite l'influence des 7 pots les uns par rapport aux autres et est utilisé uniquement pour la pré-localisation de la source émettrice par 1/6<sup>ème</sup> du cœur. Une couche de polyéthylène assure la thermalisation des neutrons par chocs élastiques, maximisant ainsi la

section efficace de capture ( $n, p$ ) dans les compteurs proportionnels  $^3\text{He}$ . Une couronne de plomb, d'une épaisseur de 15 cm, assure quant à elle l'atténuation du flux gamma, afin de limiter le bruit dû aux photoneutrons générés dans le polyéthylène suivant la réaction  $^2\text{H}(\gamma, n)$ .

La figure 2-16 illustre les différents composants du bloc DND de Phénix :

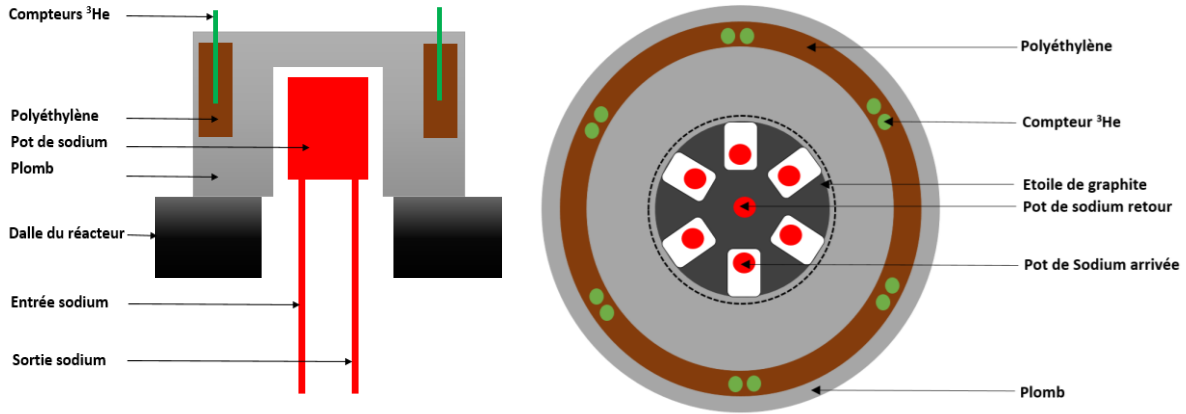


Figure 2-16 : Schéma général d'un système DND pour la fonction DRG-LRG sodium.

### 3.4. Bruit de fond de la mesure

La mesure neutronique est un moyen efficace pour s'affranchir du bruit de fond  $\beta$  et  $\gamma$  dû aux produits d'activation (*cf.* Section 2.4). Toutefois, cette mesure peut être altérée par d'autres sources de bruit neutronique [25][33]. On citera :

- Le bruit des neutrons présents dans le cœur du réacteur, problème essentiellement pénalisant pour la DND intégrée,
- La pollution des gaines combustibles lors de la conception des aiguilles par la matière fissile au niveau de la soudure du bouchon supérieur. Dans le cadre de Phénix, cette composante a constitué la majeure partie du bruit neutronique des systèmes DND,
- Le bruit lié à une réaction de type  $(\gamma, n)$  sur les noyaux de deutérium présents naturellement dans le polyéthylène des modules DRG-LRG sodium. En effet, les photons émis par le  $^{24}\text{Na}$ , avec une énergie de 2,75 MeV, vérifient la condition de la réaction photonucléaire (2,2 MeV pour les noyaux de deutérium).

### 3.5. Retour d'expérience sur la DRG-LRG sodium

En dépit du dysfonctionnement de la LRG sodium en mode « G1 » sur Phénix, ce système a présenté de très bonnes performances en mode « G3 » avec un temps de balayage de l'ensemble du cœur de 80 secondes et 20 secondes en prospection rapide. Par ailleurs, la séparation des pots de mesure par l'étoile de graphite s'est avérée peu efficace en pratique. Les signaux restaient influencés par ceux des pots voisins [33].

Des chambres à fission hautes températures ont été testées pour la problématique DND intégrée. Le temps de réponse rapide, d'environ 6 secondes sur Superphénix, est compromis par la



prédominance d'une composante de bruit de fond importante liée aux neutrons du cœur. Des études sur Superphénix ont démontré que ce bruit peut être réduit en mettant le doigt de gant, contenant la chambre à fission, derrière les échangeurs intermédiaires. Un gain important a été atteint dans cette configuration avec un passage de 2300 à 23 coups.s<sup>-1</sup>. Néanmoins, cette technique présente une efficacité 20 fois plus faible que la DRG sodium, assurée par un compteur <sup>3</sup>He [33]. L'utilisation de chambres à fission est également désavantageuse par rapport au phénomène de décharges partielles dont souffrent ces chambres à haute température. Ce phénomène a été étudié dans le cadre de travaux de thèse de G. Galli [37].

Le retour d'expérience de la DRG sodium démontre une production conséquente de bruit lié aux photoneutrons (35 %) et à la pollution de la gaine (65 %), représentant ainsi une nuisance importante pour la mesure DND. Les travaux de thèse d'E. Rohée ont démontré la possibilité de s'affranchir de cette composante de bruit, en remplaçant le polyéthylène par un matériau non hydrogéné [38]. Ces études ont également montré qu'un poste de mesure DND utilisant le graphite comme modérateur permettrait d'atteindre un meilleur rapport signal sur bruit [39].

### 4. Etat des travaux et problématique de la thèse

Dans ce chapitre, l'instrumentation historique pour la gestion de ces ruptures de gaine a été passée en revue. Deux modules principaux historiques redondants et complémentaires ont été déployés sur les RNR-Na français en rapport avec les phénomènes physiques mis en jeu lors d'une rupture.

Le premier module **DND** permet de détecter et suivre l'évolution du signal de produits de fission émetteurs de neutrons retardés (Iode, Brome) signant la phase d'une **rupture étroite indésirable**. Cette instrumentation a fait ses preuves sur les RNR-Na français. Son atout réside dans la capacité d'interpréter les signaux DND, en fixant un seuil déclenchant l'arrêt d'urgence du réacteur pour une rupture jugée dangereuse. L'arrêt d'urgence du réacteur compromet lourdement sa disponibilité et peut avoir des conséquences financières lourdes pour l'exploitant.

Le second module, basé sur une **spectrométrie gamma**, se caractérise par la détection d'une rupture dans ses premières phases (**fissure acceptable**) signée par le relâchement de produits de fission gazeux (xénon, krypton). Ce moyen d'inspection précoce peut prévenir et atténuer le risque sûreté, par exemple en signalant à l'exploitant l'existence d'une fissure acceptable mais évolutive et lui permettre de décharger l'assemblage concerné lors du prochain arrêt de tranche. Ainsi, il optimise la disponibilité de la tranche sans prise de risque.

La spectrométrie gamma a été déployée sur Phénix à titre expérimental. Compte tenu du phénomène de diffusion Compton propre aux rayonnement gamma, la mesure des produits de fission par les systèmes DRG-LRG gaz a été compromise par la présence d'un bruit de diffusion Compton engendré par les produits d'activation du sodium caloporteur et de l'argon de couverture, à savoir le <sup>24</sup>Na, <sup>22</sup>Na, <sup>20</sup>F, <sup>23</sup>Ne, et l'<sup>41</sup>Ar. Un processus de dégazage a été rendu nécessaire pour s'affranchir des produits d'activation non gazeux. Toutefois, et malgré la mise en place de ce processus, des lignes à retard ont été nécessaires à la désactivation du <sup>23</sup>Ne d'une

période de 38 secondes, induisant ainsi un temps de réponse, *a minima*, d'une quinzaine de minutes et la perte des signaux des produits de fission de vie courte dont la plus-value sera soulignée plus loin dans le manuscrit. Une dernière source de bruit, l' $^{41}\text{Ar}$ , présentant une période de 110 minutes, n'a pas pu être filtré. En effet, ce dernier ne perd que 7% de son activité dans ces lignes à retard.

Mes travaux de thèse proposent alors d'améliorer la spectrométrie gamma *via* un système à suppression Compton. La réduction des limites de détection attendue autorisera le raccourcissement des temps de réponse. La rapidité de la réponse et l'enrichissement de l'information isotopique (produits de fission de vie courte) contenue dans le signal spectral renseigneront l'exploitant, en amont des signaux DND, sur l'aggravation d'une fissure acceptable avant qu'elle n'atteigne la phase de rupture étroite indésirable.

Pour répondre à la problématique de la thèse, nous proposons une étude en plusieurs chapitres :

- Le chapitre 3 s'attardera sur la description du comportement des produits de fission gazeux dans une matrice combustible. Cette étude synthétique nous permettra d'évaluer des coefficients de diffusion du xénon et du krypton, lesquels sont une donnée clé à la racine du modèle terme source des produits de fission.
- Le chapitre 4 présentera un modèle simplifié, d'approche heuristique, visant à caractériser le terme source des produits de fission gazeux. Par la mise en équation de différents paramètres physiques (création, diffusion, modélisation de la rupture, transport), l'objectif primordial de ce modèle est d'évaluer des ordres de grandeurs des activités attendues des gaz de fission au volume de détection.
- Le chapitre 5 sera l'occasion d'étudier une instrumentation destinée à la minimisation du bruit de diffusion Compton des spectromètres gamma germanium. L'étude portera sur la mise en place d'un modèle numérique de système à suppression Compton au moyen d'un code Monte Carlo, de son étalonnage expérimental et son optimisation. Un facteur de mérite sera introduit et évalué pour juger du niveau de suppression Compton attendue par de tels systèmes.
- Le chapitre 6, chapitre de conclusion et de comparaison, présentera la modélisation d'un spectromètre gamma bas bruit Compton d'un RNR-Na. Des activités minimales détectables de produits de fission seront tout d'abord calculées puis comparées aux activités attendues. L'apport d'un tel système à suppression Compton sur le temps de réponse de la mesure dans le cadre d'une détection précoce sera exposé, et la conclusion sur l'enrichissement du diagnostic par la mesurabilité des produits de fission de courte période viendra clôturer ces travaux de thèse.



# CHAPITRE III

## LES GAZ DE FISSION DANS UNE MATRICE COMBUSTIBLE

Dans ce chapitre, nous dressons une synthèse bibliographique sur le comportement des gaz de fission dans une matrice combustible. Les principaux mécanismes influençant la migration des atomes de gaz dans un combustible irradié seront exposés et commentés. Bien que plusieurs travaux existent dans la littérature pour traiter ce sujet, leurs résultats montrent une forte divergence. L'objectif de ce chapitre est de comparer et confronter les méthodes utilisées dans la littérature, de relever les points de dispersion et de déterminer des coefficients de diffusion qui soient les plus représentatifs de la migration d'un gaz de fission sous irradiation. Ceux-ci nous serviront à l'élaboration d'un modèle analytique simplifié de relâchement des produits de fission gazeux suite à une rupture de gaine (*cf.* Chapitre 4).

Dans un premier temps, nous établirons un classement des produits de fission en fonction de leur nature chimique et décrirons leurs mécanismes d'intégration dans la matrice combustible. Dans un second temps, nous mettrons en évidence les différents mécanismes gouvernant, de manière générale, la migration des gaz de fission dans un combustible irradié. Par la suite, nous ferons une synthèse des travaux de la littérature sur la diffusion des gaz de fission s'appuyant sur le modèle pionnier de diffusion classique, celui de A. H. Booth [40]. Les critiques formulées à partir de l'analyse de cette synthèse ont conduit à la recherche de modèles plus représentatifs du comportement des gaz de fission sous irradiation. Enfin, l'ensemble de ces éléments seront rassemblés afin d'estimer des coefficients de diffusion relatifs au xénon et au krypton dans une matrice combustible qui serviront d'entrée pour établir le modèle terme source des produits de fission libérés lors d'une rupture de gaine (*cf.* Chapitre 4).

## 1. La nature des produits de fission

Suite à une fission, les produits créés peuvent être classés, suivant leur nature physico-chimique, en cinq catégories [14],[41]-[44] :

- Les **produits de fission solides** : Y, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu, Gd. Ils sont solubles dans la matrice combustible (Pu,U)O<sub>2</sub> et migrent difficilement dans celle-ci.
- Les **produits de fission formant des précipités métalliques** : Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, In, Sn, Sb, Te. Ces précipités apparaissent à taux de combustion élevé et à haute température. Ils se manifestent par des inclusions blanches de quelques micromètres dans une zone à mi-rayon de la pastille.
- Les **produits de fission formant des précipités d'oxyde** (alcalins solides ou volatils) : Rb, Cs, Sr, Ba, Zr, Nb. Certains de ces produits (Cs et Rb) sont volatils à la température du combustible mais peuvent être liquides au niveau de la gaine.
- Les **halogènes volatils** : I, Br. Suivant la température, les halogènes volatils peuvent être à l'état solide, liquide ou gazeux. A la température de la gaine, ces produits de fission sont gazeux (température d'ébullition à 183°C pour I, à 58°C pour le Br) [31]. Ceux-ci jouent un rôle important sur les propriétés du combustible et dans les effets de corrosion que subit la gaine durant son séjour en réacteur.
- Les **produits de fission gazeux** : Xe, Kr. Localisés généralement en périphérie de la pastille et insolubles dans la matrice combustible, ces gaz sont recueillis dans des volumes libres spéciaux.

## 2. Le combustible RNR-Na

L'environnement des RNR-Na se distingue de celui des REP par un fort flux neutronique et une géométrie plus compacte des éléments combustibles afin de compenser les faibles sections efficaces des neutrons rapides. Le combustible oxyde mixte (UO<sub>2</sub>, PuO<sub>2</sub>), combustible de référence pour les RNR-Na, possède une faible conductivité thermique (~2,5 W/m.K) qui, associée à une puissance spécifique élevée (2 kW/cm<sup>3</sup>), entraîne un fort gradient thermique dans l'aiguille combustible avec une température au centre pouvant excéder les 2000°C [45]. Dans ces conditions, la microstructure initiale de la matrice combustible va subir une évolution considérable au fur et à mesure de l'irradiation. Les produits de fission vont alors se restructurer en fonction de leur état physico-chimique. Le jeu diamétral oxyde-gaine, d'environ 230 µm en début de vie du crayon, va être comblé par la migration axiale et radiale de ces produits de fission [43]. Ce processus laisse apparaître la formation d'une cavité centrale. La figure 3-17 représente une coupe transversale d'une aiguille de Phénix montrant cette restructuration.

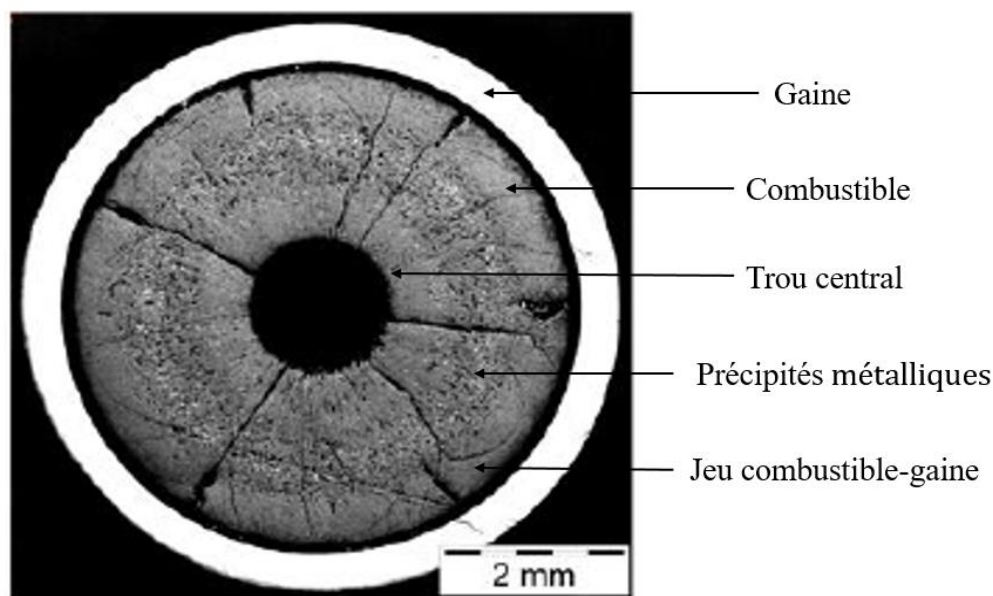


Figure 3-17 : Micrographie d'une aiguille combustible de Phénix [43].

Lorsque le jeu combustible-gaine disparaît, cela entraîne une interaction mécanique pastille-gaine (IPG) engendrant des contraintes sur cette dernière conduisant à sa fragilisation voire à sa rupture.

Dans le cadre de cette thèse, ce sont plus particulièrement les gaz de fission qui nous serviront d'indicateur précoce pour détecter, localiser et suivre l'évolution des ruptures de gaine. En effet, ces gaz sont produits en quantité importante pendant l'irradiation avec un taux de production moyen d'environ 0,31 noyaux par fission [31] et quitteront le combustible en premier, *via* différents processus (*cf.* Section 3), à la moindre perte d'étanchéité (*cf.* Chapitre 2). Dans des conditions nominales d'irradiation, le relâchement de ces gaz hors matrice combustible est plus important dans les RNR-Na, avec des taux de relâchement pouvant atteindre 90 % de leur production, que celui des REP (de l'ordre de 6 % à 60 GWj/t) [45][46].

La suite de ce chapitre sera consacrée à une synthèse bibliographique concernant l'étude des différents phénomènes régissant le comportement des gaz de fission dans une matrice combustible.

### 3. Le relâchement des gaz de fission hors combustible

En raison de leur nature chimique, les produits de fission gazeux sont relâchés en permanence de la matrice combustible vers les volumes libres des aiguilles. Le fort gradient de température et le taux de combustion impliquent que le relâchement des gaz hors combustible n'est pas uniforme entre le centre de la pastille et sa périphérie. Ainsi, ces gaz, et en fonction de leur emplacement, vont être confrontés à un certain nombre de phénomènes au cours de l'irradiation.

## 2.1. Le recul et l'éjection

Les gaz présents en périphérie de la pastille peuvent s'y échapper par recul direct lorsqu'un gaz de fission, avec une énergie cinétique suffisante (environ 80 MeV), quitte le combustible pour occuper le volume libre, ou par éjection lorsqu'une collision entre un fragment de fission et un atome de gaz entraîne l'éjection de celui-ci. Ce mécanisme n'est prépondérant que pour des températures inférieures à 1000 K et concerne essentiellement les gaz en périphérie de la pastille [47][48].

## 2.2. La diffusion

A l'intérieur de la pastille, il existe une concentration de défauts non nulle en équilibre thermodynamique dans la structure cristalline de la matrice combustible. Sous l'effet de l'irradiation et de la température, des études de dynamique moléculaire ont permis de constater que le relâchement d'un gaz de fission, par le processus de diffusion, résulte principalement de trois étapes :

- D'abord, les atomes de gaz sont produits et vont s'incorporer dans des sites préférentiels essentiellement formés de vacances d'uranium et d'oxygène, pour constituer lesdites bulles intragranulaires.
- Ensuite, ces atomes se développent et s'interconnectent, par le processus de nucléation, jusqu'à ce qu'elles entrent en contact avec le joint de grain. Les cavités ainsi formées sont dénommées bulles intergranulaires.
- Enfin, ces populations de gaz sont transportées à travers le joint de grain, jusqu'à ce qu'ils atteignent une surface périphérique libre à partir de laquelle ils peuvent se relâcher [48].

La figure 3-18 schématise les différents mécanismes d'incorporation des gaz de fission dans une matrice combustible.

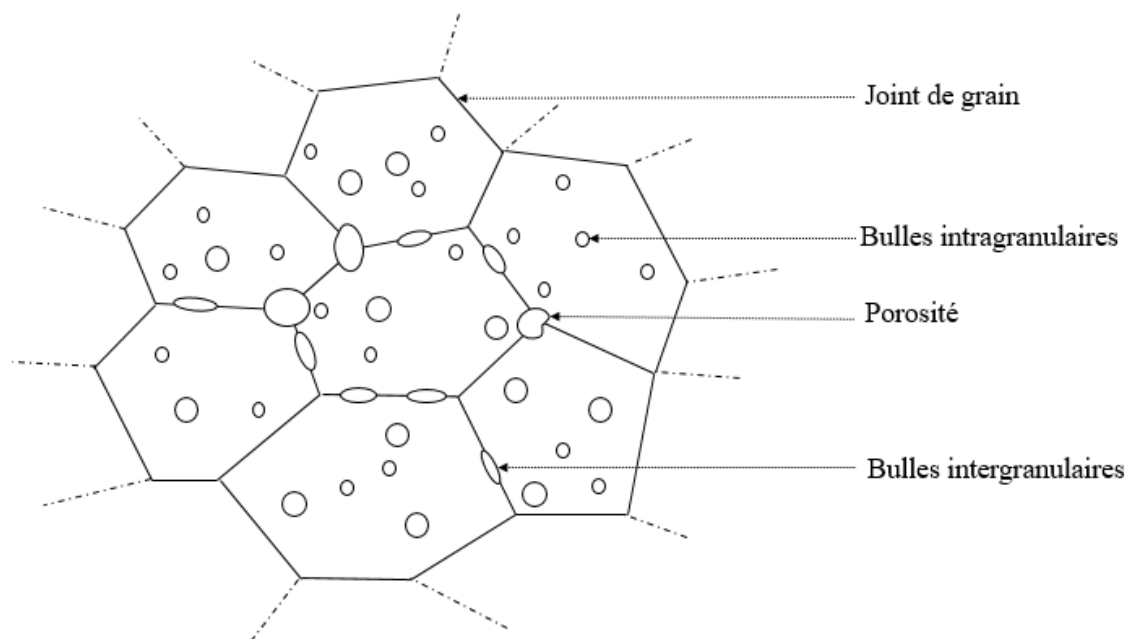


Figure 3-18 : Représentation de la répartition des différentes populations gazeuses dans une matrice combustible.

Dans la suite de ce chapitre, nous accorderons une attention particulière à la description des études théoriques et expérimentales de la diffusion dans la littérature en vue d'évaluer les coefficients de diffusion des gaz de fission (xénon, krypton) qui sont à la base des signaux de spectrométrie gamma DRG-LRG gaz.

## 4. Etudes de diffusion des gaz de fission

### 3.1. Le coefficient de diffusion

Le coefficient de diffusion d'un produit de fission PF peut être défini suivant la loi d'Arrhenius, tel que :

$$D_{PF} = D_0 \exp\left(\frac{E_a}{k_B T}\right) \quad (2)$$

Avec :

$D_0$  le facteur de fréquence, proportionnel à la fréquence des chocs entre le produit de fission et les atomes du réseau cristallin, et est exprimé en  $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ,

$E_a$  l'énergie d'activation thermique, exprimée en eV,

$k_B$  la constante de Boltzmann, exprimée en  $\text{eV} \cdot \text{K}^{-1}$ ,

$T$  la température du milieu, exprimée en K.

L'estimation de  $D_0$  et  $E_a$  dans la littérature est basée sur deux approches. La première méthode, la plus courante, repose sur la mesure de la quantité de gaz relâchée suite à des recuits isothermes. Des échantillons préalablement irradiés sont recuits à différentes températures et la mesure des isotopes radioactifs est ensuite effectuée par spectrométrie gamma (*cf.* Section 3.2) [40]. Une autre approche, moins commune du fait de sa complexité de mise en œuvre, consiste



à mesurer la fraction des isotopes relâchés directement pendant l'irradiation (*cf.* Section 3.3) [49].

### 3.2. Etudes de diffusion post-irradiation

Le modèle introduit par A. H. Booth [40] a été largement utilisé dans la littérature pour décrire les isothermes de relâchement dans le cadre de mesures post-irradiation. Ce modèle représente le combustible comme un assemblage de sphères de rayon équivalent  $a$ , appelées sphères équivalentes. Celles-ci sont considérées, dans cette approche, comme un milieu homogène ne présentant pas de défauts (bulles intergranulaires, bulles intragranulaires, joints de grains). L'empilement des sphères équivalentes laisse place à des canaux libres constituant ladite porosité. La figure 3-19 illustre la structure idéalisée du combustible selon ce modèle.

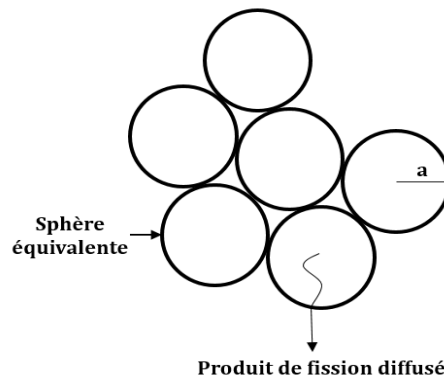


Figure 3-19 : Assemblages de cristallites sphériques de rayon équivalent  $a$  selon le modèle de A. H. Booth.

La concentration d'un fragment de fission PF, à température constante, dans une sphère équivalente à la position  $\vec{r}$  du centre de la sphère et au temps  $t$  est décrite par la loi de Fick [50] telle que :

$$\frac{\partial C_{PF}(\vec{r}, t)}{\partial t} = -\text{div} \vec{J}_{PF}(\vec{r}, t) \quad (3)$$

Et

$$\vec{J}_{PF}(r, t) = -D_{PF}(T) \overrightarrow{\text{grad}} C_{PF}(r, t) \quad (4)$$

Avec :

$C_{PF}$  la concentration du produit de fission PF, exprimée en  $\text{at} \cdot \text{cm}^{-3}$ ,

$\vec{J}_{PF}$  le vecteur densité de courant du produit de fission PF, dont le module est exprimé en  $\text{at} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ ,

$D_{PF}$  est le coefficient de diffusion du produit de fission PF, exprimé en  $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ .

Soient les conditions initiales et aux limites :

$$\begin{cases} C_{PF}(r, 0) = 0 & 0 < r < a \\ C_{PF}(a, t) = 0 & t > 0 \end{cases}$$

Dans ce modèle, il est supposé que tous les atomes de produits de fission atteignant la surface de la sphère seront relâchés. La fraction relâchée est définie alors comme :

$$f_{PF} = \frac{\text{Nombre d'atomes relâchés par unité de temps}}{\text{Nombre d'atomes produits par unité de temps}}$$

Ou encore, à l'instant  $t$  [40] :

$$f_{PF}(t) = \frac{3 \int_0^t j_{PF}(a) dt}{a \cdot N} \quad (5)$$

Avec :

$j_{PF}(a)$  le flux d'atomes quittant la surface de la sphère à  $r = a$ .

$N$  le nombre d'atomes produits dans la sphère par unité de volume et de temps, exprimé en  $\text{at} \cdot \text{cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ .

L'intégration de l'équation (4) conduit à une solution analytique approchée de la fraction relâchée  $f_{PF}$  en fonction du temps  $t$ , du rayon équivalent  $a$  et du coefficient de diffusion  $D_{PF}(T)$ . La détermination expérimentale des fractions relâchées, lors de recuits isothermes à différentes températures  $T$ , permet alors d'estimer les valeurs de coefficients de diffusion  $D_{PF}$  et de déterminer la loi d'Arrhenius associée ( $D_0, E$ ).

Le travail A. H. Booth [40] a été précurseur de plusieurs travaux de la littérature, lesquels s'inspirent de son modèle pour déterminer les isothermes de relâchement et les coefficients de diffusion associés. Un travail de synthèse des travaux de la littérature a été réalisé dans le cadre de cette thèse. La figure 3-20 illustre les lois d'Arrhenius obtenues pour le xénon dans ces différents travaux regroupés dans le cadre de cette thèse.

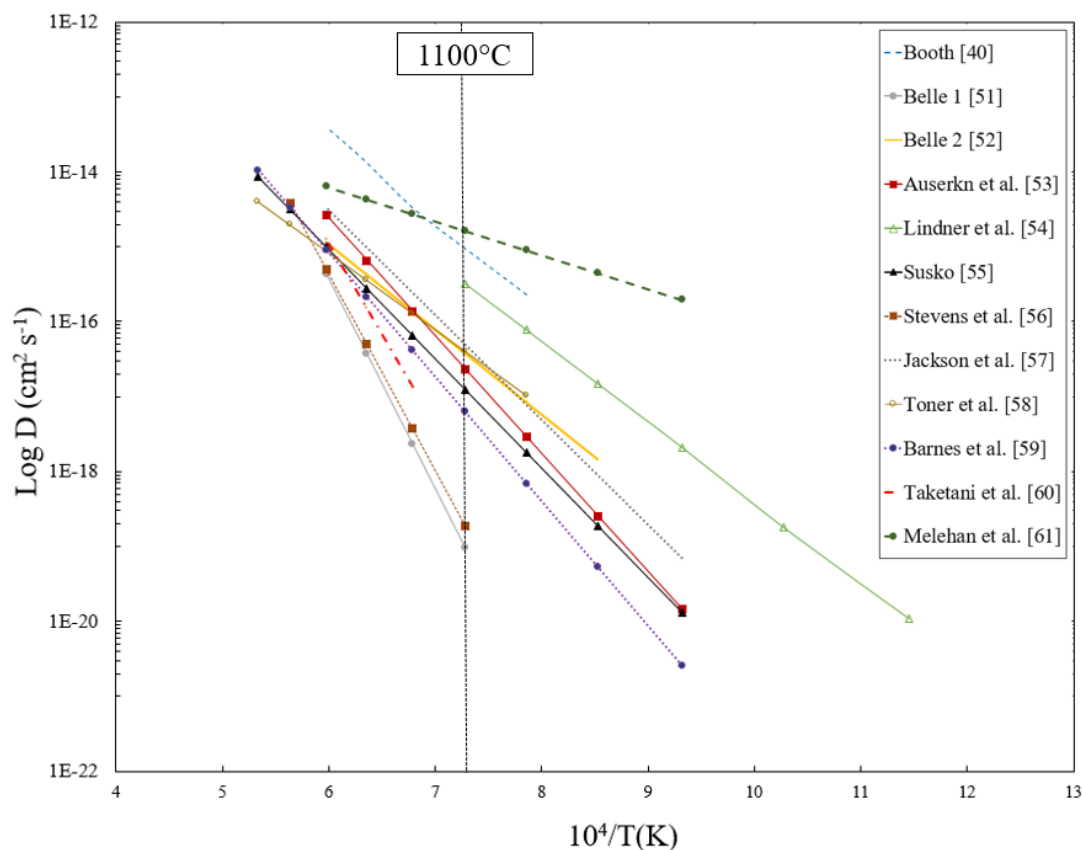


Figure 3-20 : Droite d'Arrhenius dans la littérature pour le xénon.

La figure 3-20 montre que les résultats de la littérature sont très dispersés [40],[51]-[61]. En effet, pour une température de recuit donnée, les coefficients de diffusion varient sur plusieurs ordres de grandeur (par exemple : cinq ordres de grandeur d'écart à 1100°C). Cette dispersion est également constatée entre les études de la littérature sur le relâchement du krypton [62].

L'analyse de ces travaux a mis en évidence plusieurs raisons pouvant être à l'origine de cet écart au modèle [63][64]:

- La non-évaluation ou la mauvaise **évaluation du rayon de la sphère équivalente**. En effet, les travaux de la littérature ne font pas toujours mention de cette évaluation,
- La **diversité des conditions expérimentales** : les conditions de préparation des échantillons, le taux de combustion, la stœchiométrie et les conditions de recuit diffèrent entre ces travaux et peuvent également être à l'origine de cette dispersion,
- La **structure idéalisée du combustible** excluant la contribution des défauts initialement présents ou induits par l'irradiation,

Ce constat a initié la recherche de coefficients de diffusion plus représentatifs du comportement des gaz de fission sous irradiation.

### 3.3. Etudes de diffusion sous irradiation

Expérimentalement, lors d'irradiation en pile, Turnbull *et al.* [49] ont mis en évidence un coefficient de diffusion apparent  $D$  décrit comme la somme de trois composantes de diffusion telles que :

$$D = D_A + D_M + D_T \quad (6)$$

**Pour des températures inférieures à 800°C, la diffusion est athermique  $D \approx D_A$ .** La diffusion des gaz de fission n'est plus gouvernée par l'agitation thermique mais par la traversée des fragments de fission qui déplacent des atomes le long de leur trajet se créant ainsi un chemin de diffusion. Le coefficient de diffusion athermique  $D_A$  est alors fonction du taux de fission  $\dot{F}$ :

$$D_A = A \cdot \dot{F} \quad (7)$$

Où  $\dot{F}$  le taux de fission exprimé en fissions. $\text{m}^{-3}.\text{s}^{-1}$ ,  $A$  est une constante déterminée de manière empirique ayant comme valeur  $2 \cdot 10^{-40} \text{ m}^5$  [49].

**Pour des températures comprises entre 800°C et 1400°C, la diffusion est thermique et est accélérée par l'irradiation dite diffusion mixte  $D \approx D_M$ .** Le gaz de fission diffuse sous l'effet de la température mais utilise également les lacunes créées par l'irradiation et le taux d'épuisement du combustible (*cf.* Section 2) pour diffuser dans les sites adjacents. Suite à une série d'expériences en pile, une formule analytique de cette diffusion mixte a été proposée par les mêmes scientifiques :

$$D_M = D_{M0} \cdot \sqrt{\dot{F}} \cdot e^{-\frac{E_M}{k_B T}} \quad (8)$$

**Pour des températures supérieures à 1400°C, la diffusion est thermique  $D \approx D_T$ .**

Le mécanisme de diffusion d'un gaz de fission est purement thermique. La température seule est responsable de la grande majorité des défauts dans la structure cristalline et le coefficient de diffusion thermique est décrit par la loi d'Arrhenius :

$$D_T = D_{T0} \cdot e^{-\frac{E_T}{k_B T}} \quad (9)$$

$D_{M0}$ ,  $E_M$ ,  $D_{T0}$ ,  $E_T$  sont explicités dans les références de Turnbull *et al.* [49][65][66] pour chacun des gaz de fission. Une étude comparative de ces résultats avec des travaux ultérieurs a été entreprise dans le cadre du présent travail doctoral. La figure 3-21 représente les lois d'Arrhenius obtenues par ces différentes références collectées pour le xénon sous irradiation, où les données de Turnbull *et al.* sont figurées par des points rouges.

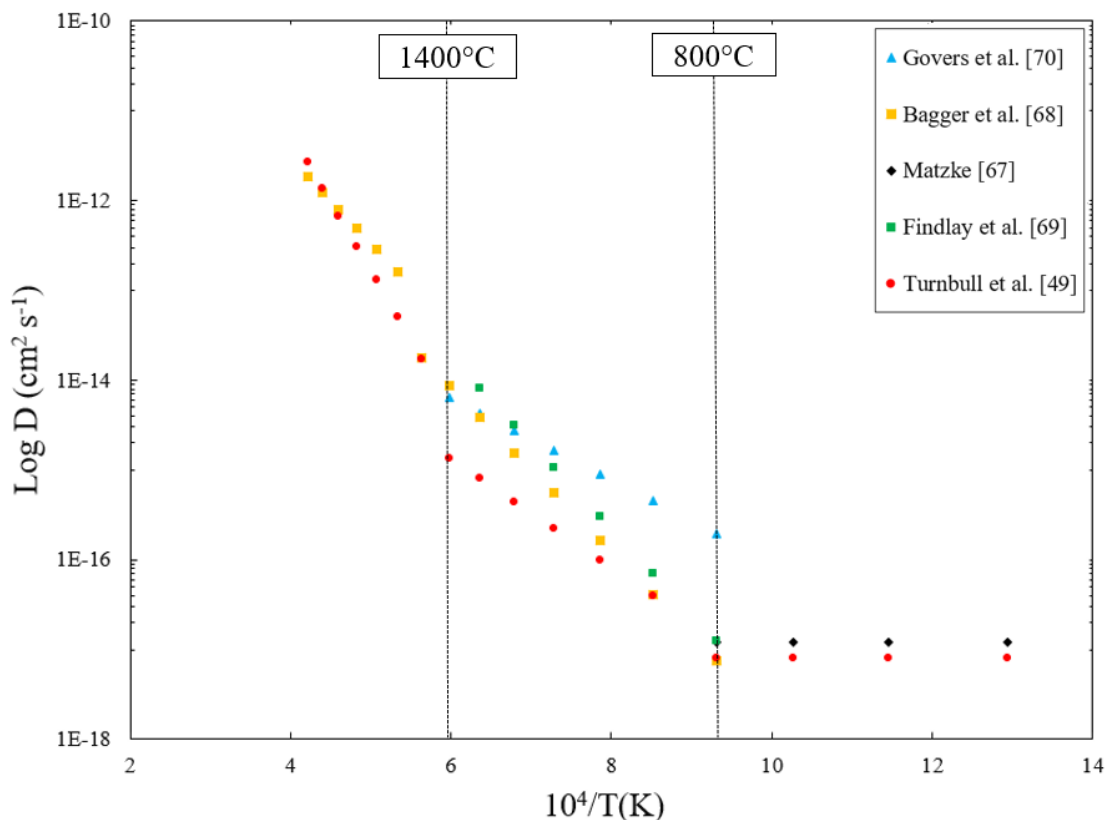


Figure 3-21 : Comparaison des diagrammes d'Arrhenius de la littérature obtenus pour le xénon sous irradiation.

En dessous de 800°C, peu d'études se sont penchées sur l'étude expérimentale du comportement des gaz de fission sous irradiation dans cette plage de température. Expérimentalement, Matzke [67] a montré que le coefficient de diffusion est indépendant de la température et montre une dépendance linéaire, ayant pour coefficient directeur  $A=10^{-39}m^5$ , avec le taux de fission [67], comme le prévoit le modèle de Turnbull *et al.*

Entre 800°C et 1400°C, les travaux de Bagger *et al.* [68] et de Findlay *et al.* [69] obtenus lors d'irradiation en réacteur concordent, en ordre de grandeur, avec les résultats de Turnbull *et al.* Des simulations de dynamique moléculaires plus récentes [70] prenant en compte les effets de l'irradiation dans la structure combustible, sont également compatibles avec ses résultats.

Au-dessus de 1400°C, le résultat des travaux de Bagger *et al.* [68] sont compatibles en ordre de grandeur avec ceux de Turnbull *et al.* et s'accordent sur le mécanisme de diffusion purement thermique dans cette plage de température.

Les travaux de Turnbull *et al.* constituent une référence incontournable dans l'étude du comportement des gaz de fission directement sous irradiation. En effet, le coefficient de diffusion apparent, mis en évidence ci-dessus, est fréquemment utilisé dans les codes thermomécaniques tel que COPERNIC 2, MARGARET ou TRANSURANUS [72]–[74].

L'étude de diffusion du krypton dans des expériences en pile a été, de manière générale, moins abordée dans la littérature. L'étude la plus conséquente reste celle de Turnbull *et al.* sur l'estimation du coefficients de diffusion du krypton lors d'expériences en pile [49]. Dans la suite de ce manuscrit, nous retiendrons donc le coefficient de diffusion du krypton, exprimé par ces mêmes travaux, afin d'établir un modèle terme source des produits de fission libérés lors d'une rupture de gaine.

### 5. Conclusion

A toute température, il existe une concentration de défauts non nulle en équilibre thermodynamique dans la structure cristalline du combustible. Le relâchement des gaz de fission hors matrice combustible peut résulter de la dualité entre le gradient de température élevé à l'intérieur des aiguilles et l'irradiation, laquelle produit des défauts ponctuels dont la concentration excède celle de l'équilibre thermodynamique, créant ainsi des chemins de diffusion pour les gaz de fission. Un autre type de relâchement, non-diffusif, peut survenir lorsqu'un produit de fission, présent à la surface périphérique du combustible, s'échappe de celui-ci par recul direct ou suite à une collision avec un fragment de fission (*knock-out*).

Un travail de synthèse bibliographique a été entrepris en vue d'exprimer les coefficients de diffusion du xénon et du krypton, lesquels seront nécessaires à l'élaboration d'un modèle analytique de relâchement hors gaine suite à une rupture de celle-ci.

Nous avons mis en évidence une importante dispersion entre les travaux de la littérature dans l'estimation du coefficient de diffusion suivant l'approche de A. H. Booth. Nombreux sont les facteurs pouvant être à l'origine d'un tel écart au modèle. Nous citerons : la structure idéalisée du combustible excluant les dommages induit par l'irradiation, l'évaluation du rayon de la sphère équivalente, les conditions de préparation des échantillons et les conditions de recuits.

La deuxième approche, celle de Turnbull *et al.*, met en exergue un coefficient de diffusion apparent dépendant de la température et de l'irradiation. Ses résultats révèlent, en comparaison à d'autres expériences en pile, une dispersion acceptable sur l'estimation du coefficient de diffusion. Par ailleurs, ce constat est corroboré par l'utilisation des travaux de Turnbull *et al.* dans de nombreux codes thermomécaniques de référence.

Dans le chapitre suivant, nous utiliserons les coefficients de diffusion sélectionnés dans la formulation du modèle terme source des produits de fission gazeux.



# CHAPITRE IV

## ESTIMATION DU TERME SOURCE

Dans ce chapitre, nous détaillerons le développement d'un modèle multiparamétrique, dit modèle « terme source des produits de fission ». Le développement de ce modèle dans le cadre de cette thèse est particulièrement motivé par la nécessité de prédire les activités attendues au poste de mesure faisant suite à un relâchement de gaz de fission dans le sodium primaire. Par ailleurs, ce modèle vise à améliorer le modèle de rejet développé au CEA/DEN/DER/LDCI [75]. Il y sera ajouté un modèle de diffusion des atomes gazeux dans la matrice combustible prenant en compte l'inhomogénéité radiale du champ de température et adapté à la voie LRG gaz *via* un relâchement dans le sodium primaire et un entraînement jusqu'au volume de mesure. Plusieurs étapes ont été considérées dans l'élaboration de ce modèle :

- La sélection des isotopes d'intérêt,
- La création et la diffusion des isotopes dans la matrice combustible,
- L'accumulation des isotopes pendant l'irradiation en l'absence de toute rupture,
- La simulation de la rupture de gaine et du relâchement des isotopes d'intérêt,
- Le transport dans le sodium, le dégazage et l'arrivée au volume de mesure.

Les différentes hypothèses et paramètres associés à ce modèle seront exposés au fur et à mesure de sa description.



## 1. Sélection des isotopes d'intérêt

Les gaz de fission sont soit des produits de fission directs, soit issus des filiations de leurs précurseurs : l'iode pour le xénon et le brome pour le krypton. Afin d'identifier les isotopes les plus pertinents à suivre dans le cadre de cette étude, un premier facteur de mérite a été introduit et prend en compte, d'une part, le rendement  $\varepsilon_x$  de l'isotope pour une fission d'un noyau de  $^{239}\text{Pu}$  induite par un neutron rapide, d'autre part, la section efficace  $\sigma$  de fission du  $^{239}\text{Pu}$  dans un spectre rapide [11]. Ce facteur de mérite  $F_x$  peut être défini selon l'équation (10) :

$$F_x = \varepsilon_x \cdot \sigma \quad (10)$$

Le tableau 4-2 récapitule les facteurs de mérite calculés pour l'ensemble des radio-isotopes du xénon et du krypton.

Tableau 4-2 : Facteur de mérite pour la sélection des gaz de fission d'intérêt.

Isotope	Demi-vie	$F_x$
$^{135}\text{Xe}$	9,14 h	1,24E-01
$^{133}\text{Xe}$	5,24 j	1,15E-01
$^{133\text{m}}\text{Xe}$	2,2 j	9,68E-02
$^{137}\text{Xe}$	3,82 m	9,17E-02
$^{138}\text{Xe}$	14,1 m	7,75E-02
$^{139}\text{Xe}$	39,68 s	5,05E-02
$^{140}\text{Xe}$	13,6 s	2,64E-02
$^{135\text{m}}\text{Xe}$	15,3 m	2,44E-02
$^{89}\text{Kr}$	3,15 m	2,37E-02
$^{90}\text{Kr}$	32,32 s	2,33E-02
$^{88}\text{Kr}$	2,8 h	2,11E-02
$^{87}\text{Kr}$	1,3 h	1,70E-02
$^{141}\text{Xe}$	1,73 s	7,70E-03
$^{85\text{m}}\text{Kr}$	4,5 j	6,46E-03
$^{85}\text{Kr}$	10,75 a	1,56E-04
$^{81}\text{Kr}$	2,3 a	8,32E-10
$^{81\text{m}}\text{Kr}$	13,1 s	9,97E-11
$^{79}\text{Kr}$	1,46 j	1,26E-13
$^{79\text{m}}\text{Kr}$	50 s	5,97E-14

Les résultats du tableau 4-2 constituent un premier argument pour identifier les isotopes les plus prépondérants. Il s'agit de :  $^{135}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{137}\text{Xe}$ ,  $^{138}\text{Xe}$ ,  $^{139}\text{Xe}$ ,  $^{140}\text{Xe}$ ,  $^{135\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{89}\text{Kr}$ ,  $^{90}\text{Kr}$ ,  $^{88}\text{Kr}$ ,  $^{87}\text{Kr}$ ,  $^{141}\text{Xe}$ ,  $^{85\text{m}}\text{Kr}$  et le  $^{85}\text{Kr}$ .

Compte tenu de leur période de demi-vie, supérieure à l'heure, et de l'intensité de leurs raies caractéristiques, les isotopes  $^{135}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{87}\text{Kr}$ ,  $^{88}\text{Kr}$  et le  $^{85\text{m}}\text{Kr}$  ont été automatiquement

suivis par le module spectrométrie gamma de Phénix [14][31]. Le  $^{85}\text{Kr}$ , de période relativement longue, a quant à lui été utilisé comme témoin d'aiguilles très irradiées [31].

De plus, l'apparition d'isotopes présentant une demi-vie plus courte ( $< 15$  min), à savoir le  $^{135\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{137}\text{Xe}$  et  $^{138}\text{Xe}$ , ont servi comme témoin de la gravité de la perte d'étanchéité [31]. Cependant, l'état de l'art ne fait pas mention de la mesure de PF de durée de vie plus courte que le  $^{137}\text{Xe}$  (3,82 min). Un des objectifs majeurs des présents travaux de thèse est de dépasser cette limitation. Nous étudierons alors la faisabilité de la détection de plus courte période que le  $^{137}\text{Xe}$  avec comme objectif, d'une part, d'enrichir l'inventaire des isotopes indicateurs de rupture de gaine, d'autre part, d'avoir un outil puissant et très précoce de renseignement sur la gravité d'une rupture, seulement permis par la détection *a minima* d'un deuxième isotope de courte période ( $< 3,82$  min) comme par exemple le  $^{89}\text{Kr}$  (3,15 min). En effet, cet isotope a pu signer très précocement un défaut d'étanchéité dans le cadre des travaux d'E. Rohée sur OSIRIS [76][77]. Une discussion sur l'opportunité de suivre ces isotopes de vies courte tel que le  $^{137}\text{Xe}$  et le  $^{89}\text{Kr}$  pour renseigner sur la gravité d'une rupture fera l'objet d'une discussion détaillée dans la Section 3.1 du présent chapitre.

En résumé, les isotopes d'intérêt sélectionnés pour le suivi isotopique dans le cadre de cette thèse seront :  $^{135}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{87}\text{Kr}$ ,  $^{88}\text{Kr}$ ,  $^{85\text{m}}\text{Kr}$ ,  $^{135\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{137}\text{Xe}$ ,  $^{138}\text{Xe}$ ,  $^{89}\text{Kr}$ .

## 2. Modélisation du système fermé

La modélisation du système fermé (phase d'irradiation précédant l'instant de la rupture) implique l'évaluation de la quantité des produits de fission créée dans la matrice combustible pendant l'irradiation en absence de ladite rupture. L'inventaire du mélange gazeux a été, préalablement, estimé *via* l'implémentation des équations différentielles de Bateman paramétrisées [78],

- d'une part, par le flux neutronique issu d'un calcul Monte Carlo TRIPOLI-4 pour un cœur type CFV3 [15][75],
- d'autre part, par un calcul d'évolution sous DARWIN dédié au combustible d'ASTRID [15][75].

Il a été évalué, pour chaque isotope  $x$  et pour différentes zones du cœur, un taux de création  $\dot{Q}_x$  incluant :

- Sa création en tant que produit de fission,
- Sa formation par décroissance du père,
- Sa formation par capture neutronique,
- Sa disparition par capture.

Le modèle terme source des PFs, détaillé dans ce chapitre, est appliqué au cas d'une aiguille située au centre du cœur CFV3, comprenant une zone fissile supérieure avec une hauteur de

350 mm, une zone fissile inférieure avec une hauteur de 250 mm et une zone fertile centrale avec une hauteur de 200 mm. Les trois zones ont chacune un diamètre de 8,45 mm [79].

## 2.1. Modèle de migration des produits de fission

Dans une matrice combustible, l'évolution de la concentration d'un isotope  $x$  à la position  $\vec{r}$  et au temps  $t$  obéit à l'équation de continuité [80], soit

$$\frac{\partial C_x(\vec{r}, t)}{\partial t} = -\text{div} \vec{J}_x(\vec{r}, t) - \lambda_x C_x(\vec{r}, t) + \dot{Q}_x(\vec{r}, t) \quad (11)$$

Avec

$\lambda_x$  la constante de décroissance de l'isotope  $x$  exprimée en  $s^{-1}$ ,

$\dot{Q}_x$  le taux de création de l'isotope  $x$  exprimé en  $\text{at.m}^{-3}.\text{s}^{-1}$ ,

$\vec{J}_x$  le nombre de particules traversant une surface unitaire par unité de temps, dit vecteur densité de courant et est exprimé en  $\text{at.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ . La proportionnalité entre le flux de particules et le gradient de concentration est exprimée par la première loi de Fick [81], soit

$$\vec{J}_x(\vec{r}, t) = -D_x(T(\vec{r})) \overrightarrow{\text{grad}} C_x(\vec{r}, t) \quad (12)$$

Avec

$D_x(T(\vec{r}))$  le coefficient de diffusion.

En injectant l'équation (12) dans l'équation de continuité (11), on obtient l'équation de diffusion (13), soit

$$\frac{\partial C_x(\vec{r}, t)}{\partial t} = \Delta \left( D_x(T(\vec{r})) C_x(\vec{r}, t) \right) - \lambda_x C_x(\vec{r}, t) + \dot{Q}_x(\vec{r}, t) \quad (13)$$

Où  $\Delta$  est le laplacien [82].

Pour caractériser la migration d'un isotope  $x$  à la position  $\vec{r}$  et au temps  $t$ , il faut :

- Formuler des hypothèses sur la géométrie du problème pour exprimer le laplacien en fonction des coordonnées spatiales  $\vec{r}$ ,
- Exprimer les coefficients de diffusion  $D_x$  du xénon et du krypton, lesquels sont donnés par l'étude détaillée du Chapitre 3,
- Décrire la répartition du gradient de température  $T(\vec{r})$  en chaque point du milieu dans une pastille type CFV3.

Visant un modèle simplifié permettant d'évaluer des ordres de grandeur des activités attendues, nous assimilerons les pastilles combustibles à un cylindre homogène sans joints de grain, ni bulles et sans présence du trou central pouvant apparaître en cours d'irradiation (*cf.* Section III.2). Prenons par exemple le cas d'une pastille située au centre de la zone fissile supérieure. Celle-ci ayant une longueur très grande devant son diamètre ( $350 \text{ mm} \gg 8,45 \text{ mm}$ ), nous

pouvons négliger, de ce fait, la diffusion axiale et réduire les coordonnées cylindriques à la seule coordonnée radiale  $r$ .

La distribution radiale du gradient de température a été modélisée selon l'équation de la chaleur [83], soit

$$\frac{1}{r} \frac{d}{dr} \left( r \frac{dT}{dr} \right) + \frac{q_v}{k} = 0 \quad (14)$$

Où  $k$  la conductivité thermique du combustible [84][16],  $q_v$  est la puissance volumique [16].

En régime permanent, pour des conditions aux limites d'une pastille type CFV3, soient  $T(r = 0) = 2100^\circ\text{C}$  au centre de la pastille à  $T(r = r_{max}) = 600^\circ\text{C}$  à sa périphérie [79] [85], nous obtenons la distribution du gradient de température représentée sur la figure 4-22.

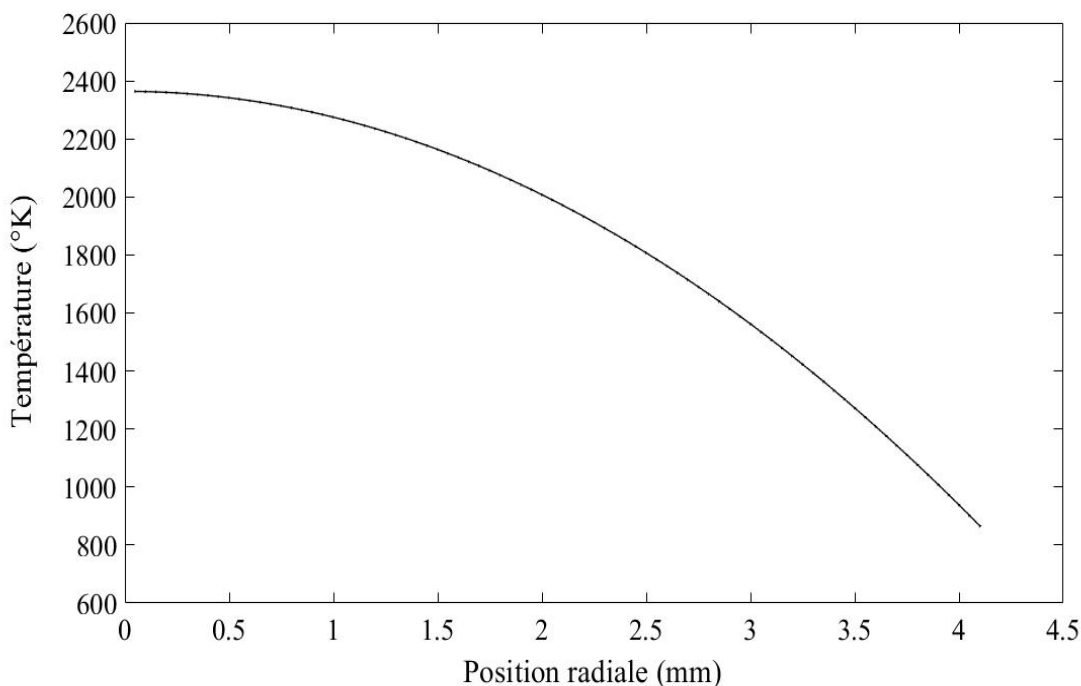


Figure 4-22 : Répartition du champ de température radial dans une pastille combustible type CFV3.

Nous observons que la distribution radiale du gradient de température n'est pas homogène dans toute la pastille. Cette distribution suit une tendance quasi-parabolique entre le centre de l'aiguille et sa périphérie, une répartition typique d'une pastille combustible en parfait accord avec les résultats de la littérature [86].

Avec ces hypothèses (sur  $r$  et l'équation (13)), nous pouvons désormais, réécrire les équations (13) et (12) sous la forme :

$$\frac{\partial C_x(r, t)}{\partial t} = D_x(T(r)) \left( \frac{\partial^2 C_x(r, t)}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial C_x(r, t)}{\partial r} \right) - \lambda_x C_x(r, t) + \dot{Q}_x \quad (15)$$

$$j_x(r, t) = -D_x(T(r)) \frac{\partial C_x(r, t)}{\partial r} \quad (16)$$

Nous posons les conditions initiales et aux limites suivantes :

$$\begin{aligned} \forall r, C_x(r, 0) &= 0 \\ \forall t, C_x(r = R, t) &= 0 \\ \left. \frac{\partial C_x(r, t)}{\partial r} \right|_{r=0} &= 0 \end{aligned} \quad (17)$$

La première condition traduit une concentration négligeable au démarrage de l'irradiation, la seconde condition exprime l'absence d'adsorption, ou de rétention, des atomes de gaz à la surface du combustible. Enfin, la dernière condition traduit la continuité en  $r = 0$ .

La résolution des équations (15) et (16) par la méthode d'Euler permet de décrire le profil de migration pour chacun des isotopes d'intérêt  $x$ , en tout point de la zone combustible considérée. La figure 4-23 illustre ce profil, pour une pastille située au milieu de la zone supérieure, pour trois isotopes d'intérêt au bout de 410 jours de fonctionnement du réacteur à puissance nominale.

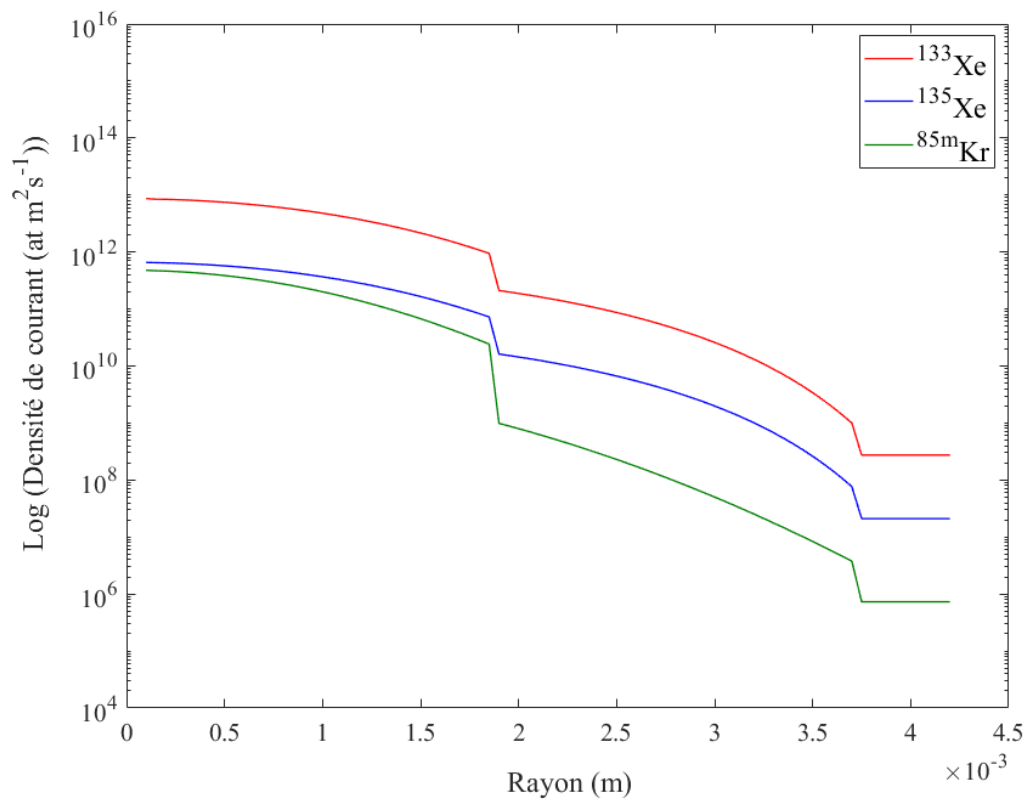


Figure 4-23 : Profil de diffusion radial dans la pastille supérieure pour quelques isotopes d'intérêt après 410 jours d'irradiation à puissance nominale.

La figure 4-23 montre que le champ de migration radial n'est pas homogène dans tout le combustible. A l'intérieur de la pastille, cette variation est gouvernée par la présence d'un fort gradient de température (cf. Section 2.1). En périphérie de la pastille, le profil de migration devient constant montrant une indépendance à la température du milieu.

La discrétisation du coefficient de diffusion suivant le modèle de Turnbull *et al.* (cf. Chapitre 3) aux températures spécifiques à 800°C et 1400°C est une aberration physique (artefact de calcul) que l'on retrouvera sur la figure 4-23 à  $r = 2$  mm et  $r = 3,7$  mm.

## 2.2. Modèle d'accumulation des produits de fission

Dans un système fermé, la quantité de gaz rares de fission relâchée par le combustible, dans les volumes libres de l'aiguille, sera alors fonction du nombre d'atomes atteignant la surface libre du combustible à  $r = r_{max}$  par unité de surface et de temps, soit

$$j_x(r_{max}, t) = -D(r) \frac{\partial C(r, t)}{\partial r} \Big|_{r=r_{max}} \quad (18)$$

Entre le combustible et la gaine, la population de l'isotope  $x$  se voit alors évoluer sous plusieurs effets :

- Par migration depuis le combustible à  $r = r_{max}$ ,
- Par décroissance radioactive,
- Par désexcitation vers l'état fondamental de l'état métastable  $M$ ,
- Par création *via* la décroissance du père  $P$ .

Que l'on peut traduire par application des équations différentielles de Bateman, soient

$$\begin{aligned} \frac{dN_x(t)}{dt} &= -\lambda_x N_x(t) + \lambda_M N_M(t) + \lambda_P N_P(t) + S j_x(t) \\ \frac{dN_M(t)}{dt} &= -\lambda_M N_M(t) + S j_M(t) \\ \frac{dN_P(t)}{dt} &= -\lambda_P N_P(t) + S j_P(t) \end{aligned} \quad (19)$$

Avec

$N_x, N_M, N_P$  le nombre de noyaux respectifs de  $x, M$  et  $P$ ,

$\lambda_x, \lambda_M, \lambda_P$  les constantes de décroissance respectives de  $x, M$  et  $P$ ,

$j_x, j_M, j_P$  les modules des vecteurs densité de courant respectifs de  $x, M$  et  $P$  correspondant au nombre de noyaux quittant le combustible à  $r = r_{max}$ . Similairement au xénon et au krypton, les coefficients de diffusion des pères iode et brome ont été également déterminés à partir des travaux de Turnbull *et al* [66].

$S$  est la surface latérale de la zone combustible définie par

$$S = 2\pi Rh \quad (20)$$

Où  $h$  la hauteur de la zone combustible considérée.

En supposant un nombre de noyaux  $x$  nul dans les volumes libres au démarrage du réacteur, la résolution du système d'équations (10) permet d'évaluer le nombre de noyaux accumulé dans ces volumes à un temps d'irradiation donné. La figure 4-24 présente dans un histogramme le nombre d'atomes accumulés à partir des trois zones combustibles au bout d'un temps  $t_{irr} = 410$  jours de fonctionnement du réacteur à puissance nominale.

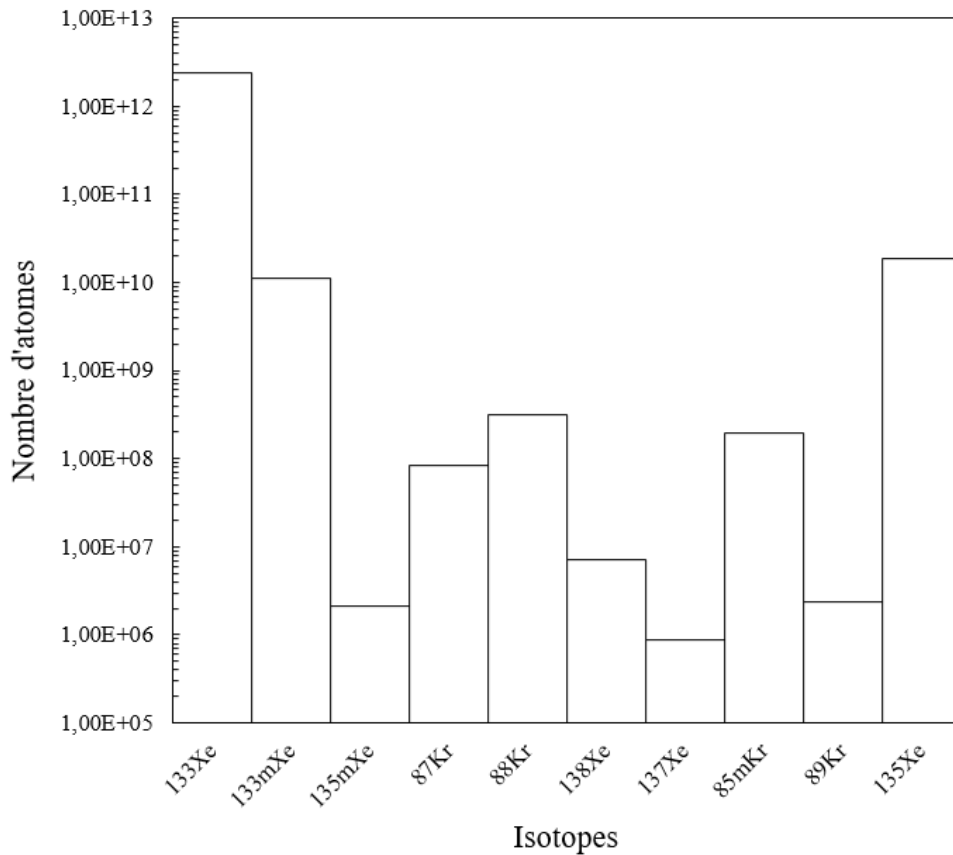


Figure 4-24 : Nombre d'atomes de gaz cumulés dans les volumes libres au bout de 410 jours d'irradiation à partir des trois zones combustibles.

Après évaluation du nombre d'atomes dans les volumes libres, sans perte d'étanchéité, au temps d'irradiation  $t_{irr}$ , nous proposons dans la suite de cette étude d'évaluer, pour une taille de défaut donnée, la proportion du stock libérée et sa cinétique de relâchement associée.

### 3. Modélisation du système ouvert

#### 3.1. Le diagnostic d'une rupture *via* la courbe $R/B$

A l'instant de la perte d'étanchéité, les produits de fission gazeux accumulés dans les volumes libres durant l'irradiation se relâchent dans le sodium caloporteur sous forme de bouffées dépendant de la taille de la fissure primaire et de la pression interne de l'aiguille. Deux phénomènes concomitants alimentent la fissure en produits de fission :

## Chapitre 4 – Estimation du terme source des produits de fission

- La dépressurisation du stock accumulé  $N_x$ ,  $N_M$ ,  $N_P$  dans les volumes libres à  $t_{irr}$ ; Ce mode domine au début de la perte d'étanchéité,
- Le cheminement par diffusion de nouveaux produits de fission à la surface  $r_{max}$  combustible  $t > t_{irr}$ .

A la fin de la « bouffée », lorsque l'équilibre des pressions entre l'interne de l'aiguille et le sodium est atteint, seule l'alimentation par diffusion demeure. Le relâchement étant uniquement constitué de gaz rares, nous sommes toujours dans le cas d'une fissure acceptable (sans risque pour la sûreté). Cependant, la perte de pression interne augmente le risque de pénétration du sodium par la fissure et la mise en contact avec l'oxyde combustible. Le cas échéant est qualifié de fissure étroite et un deuxième phénomène s'ajoute alors à l'inventaire produit par diffusion : le recul. En effet, une fission produite à l'interface combustible/sodium éjecte les produits de fission avec une énergie cinétique suffisante pour traverser quelques  $\mu\text{m}$  de combustible, atteindre le sodium et être entraînés par ce dernier.

Pour résumer, nous pouvons distinguer trois régimes de rejet :

- Un régime de bouffée dominé par le phénomène de dépressurisation où une grande quantité de PFs est relâchée. Cette phase est propice à la surveillance globale du cœur et à la localisation de l'assemblage fuyard,
- Un régime de diffusion où l'alimentation de la fissure par le phénomène de diffusion domine,
- Un régime de recul signant le passage d'une fissure acceptable à une fissure étroite où le relâchement des PFs par recul cinétique vient s'ajouter au processus de diffusion.

En regard de ces processus, nous comprenons que la spectrométrie gamma peut jouer deux fonctions essentielles :

- La localisation (en redondance de la chambre d'ionisation à circulation), lors de la phase de bouffée, de l'assemblage où est apparue une fissure acceptable,
- Et, après ciblage de l'assemblage, la surveillance du passage d'une fissure acceptable à une fissure étroite.

Le physicien doit alors répondre à la problématique suivante : quelle peut-être la signature de spectrométrie gamma pouvant marquer le passage d'une fissure acceptable vers une fissure étroite ? Pour répondre à cette question, nous savons que l'apparition du phénomène de recul est le seul élément différenciant. Or, la spectrométrie gamma se distingue par sa capacité à séparer les composantes isotopiques du signal gamma. La nouvelle question qui en découle est : quelle est la différence en terme d'inventaire isotopique entre le phénomène de diffusion et le phénomène de recul.

Dans le phénomène de diffusion, la vitesse de migration des PFs est conditionnée par le coefficient de diffusion  $D_x$  introduit dans le chapitre 3. Il en résulte que, relativement à l'inventaire produit par fission, l'inventaire atteignant la surface favorise les PFs de vie longue



par rapport aux PFs de vie courte comme le montre la distribution de la figure 4-25. Nous définissons la fraction relâchée  $R_x/B_x$  comme le ratio entre le taux de relâchement  $R_x$  et le taux de production par fission  $B_x$  d'un isotope  $x$ . Il est observé expérimentalement [87][88] que la courbe du  $\log(R/B)$  montre une tendance linéaire décroissante de pente  $-k$  en fonction de  $\log(\lambda)$  (voir courbe bleue de la figure 4-25).

Dans le phénomène de recul, le rejet des PFs à l'interface oxyde/sodium est indépendant de la durée de vie des PFs. La fonction  $\log(R/B)$  sera alors constante en fonction de  $\log(\lambda)$  comme illustré par la droite orange de la figure 4-25.

Ainsi, lors du passage d'une fissure acceptable à une fissure étroite, le phénomène de recul, s'ajoutant au phénomène de diffusion, va induire une inflexion de la fonction  $\log(R/B)$  vers les  $\lambda$  élevés. La spectrométrie gamma est donc un outil capital dans la gestion du risque de sûreté où l'exploitant décelant précocement une fissure étroite choisira un déchargement de l'assemblage concerné lors du prochain arrêt de tranche pour éviter la dégradation de la fissure vers une rupture large présentant un risque pour la sûreté de la centrale. L'analyse isotopique permise par la spectrométrie gamma est en mesure de fournir un diagnostic plus précoce que la mesure de comptage neutronique DND. Toutefois, il est important de souligner que la technique sera d'autant plus précoce et pertinente, qu'elle sera capable de mesurer le plus grand nombre de produits de fission. Comme l'inflexion de courbe suite au contact sodium/oxyde apparaît en premier pour les isotopes de vie courte, nous nous attacherons à optimiser le système afin qu'il puisse mesurer, lors du processus de diffusion seul, des produits de fission de constante de décroissance  $\lambda$  la plus élevée possible.

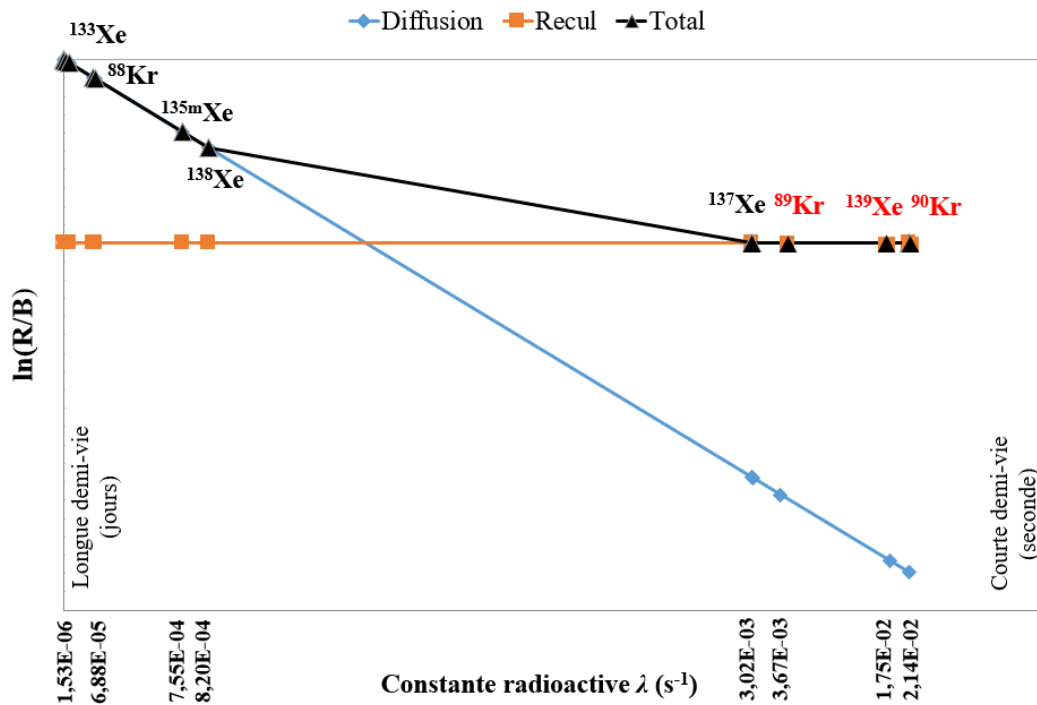


Figure 4-25 : Forme typique de la fonction  $\ln(R/B) = f(\lambda)$

La figure 4-25 montre une distribution type de la courbe  $R/B$  de ces différentes phases de rejet en fonction de la constante de désintégration  $\lambda$ .

Dans notre étude de faisabilité, il est important de modéliser conjointement ces processus de bouffée et de diffusion cruciaux à respectivement localiser et suivre une perte d'étanchéité.

### 3.2. Cinétique de relâchement au travers d'une fuite

Une rupture de gaine peut être caractérisée par son flux gazeux  $q$  [89], lequel correspond à un nombre d'atomes traversant la fuite par unité de temps  $t$ . Le flux est lui-même caractérisé par un régime d'écoulement associé au nombre de Knudsen  $K_n$ . Il est défini par :

$$K_n = \frac{d_f \cdot \sqrt{2} \cdot \pi \cdot \tau^2 \cdot P(t)}{k_B \cdot T} \propto d_f \cdot P(t) \quad (21)$$

Avec

$\tau$  le diamètre de l'atome de l'isotope considéré,

$d_f$  la taille de la fuite considérée circulaire dans ce modèle,

$P$  la pression des gaz dans les volumes libres variant au cours du temps. Cette pression :

- diminue par dépressurisation de l'aiguille suivant un régime d'écoulement,
- augmente suite aux émissions de gaz créés dans le combustible.

Il vient alors la relation suivante :

$$V \frac{dP_x}{dt} = \alpha k_B T - q(d_f, P_x(t)) \quad (22)$$

Où  $V$  est le volume libre total de l'aiguille,  $\alpha$  est le taux de production de l'hélium et des gaz de fission donné par le code d'évolution DARWIN au temps d'irradiation  $t_{irr}$ .

Suivant la valeur du nombre de Knudsen  $K_n$ , quatre régimes d'écoulement sont à distinguer :

- Moléculaire  $K_n < 1$ , évalué ici pour des tailles de fuite  $d_f < 15 \text{ nm}$ ,
- Intermédiaire  $1 \leq K_n \leq 200$ , pour des tailles de fuite  $15 \text{ nm} \leq d_f \leq 3 \text{ }\mu\text{m}$ ,
- Laminaire  $200 < K_n \leq 2200$  pour des tailles de fuite  $3 \text{ }\mu\text{m} < d_f \leq 33 \text{ }\mu\text{m}$ ,
- Turbulent  $K_n > 2200$ , pour des tailles de fuite  $d_f > 33 \text{ }\mu\text{m}$ ,

Dans ce modèle, on ne tiendra pas compte de l'écoulement en régime turbulent. En effet, ce régime correspond à des tailles de défauts plus grandes (plusieurs dizaines de micromètres) que celles traitant le cas d'une perte d'étanchéité dans le cadre d'une rupture gaz [89][32]. Les débits de fuite associés aux trois régimes d'écoulement peuvent être exprimés comme mentionné dans la référence [75], [89] par

$$\begin{aligned}
 q_M(d_f, P(t)) &= \frac{d_f^3}{3l} \sqrt{\frac{\pi k_B T}{2M}} (P(t) - P_S) \\
 q_I(d_f, P(t)) &= q_L(P) + \vartheta \cdot q_M(P(t)) \\
 q_L(d_f, P(t)) &= \frac{\pi d_f^4}{256 l \eta} (P(t)^2 - P_S^2)
 \end{aligned}
 \tag{23}$$

Avec

$q_M$ ,  $q_L$ ,  $q_I$  étant respectivement les débits moléculaire, laminaire et intermédiaire.  
 $d_f$  est la taille de la fuite,  $l$  est l'épaisseur de la gaine,  $\vartheta$  est une constante dépendant du gaz, de sa pression et de la taille de la fuite [89],  $\eta$  est la viscosité dynamique du gaz, exprimée selon la loi de Sutherland [90],  $P_S$  est la contre-pression exercée par le sodium, exprimée par le théorème de Bernoulli [91].

L'évolution temporelle du débit de fuite, suivant les différents régimes, est alors obtenue *via* la résolution du système d'équations (23). Pour une taille de fuite donnée, les figures 4-26 et 4-27 et 4-28 représentent l'évolution des débits  $q(P(t))$ , relatifs aux trois régimes d'écoulement considérés, le début de la fuite étant considéré comme origine des temps.

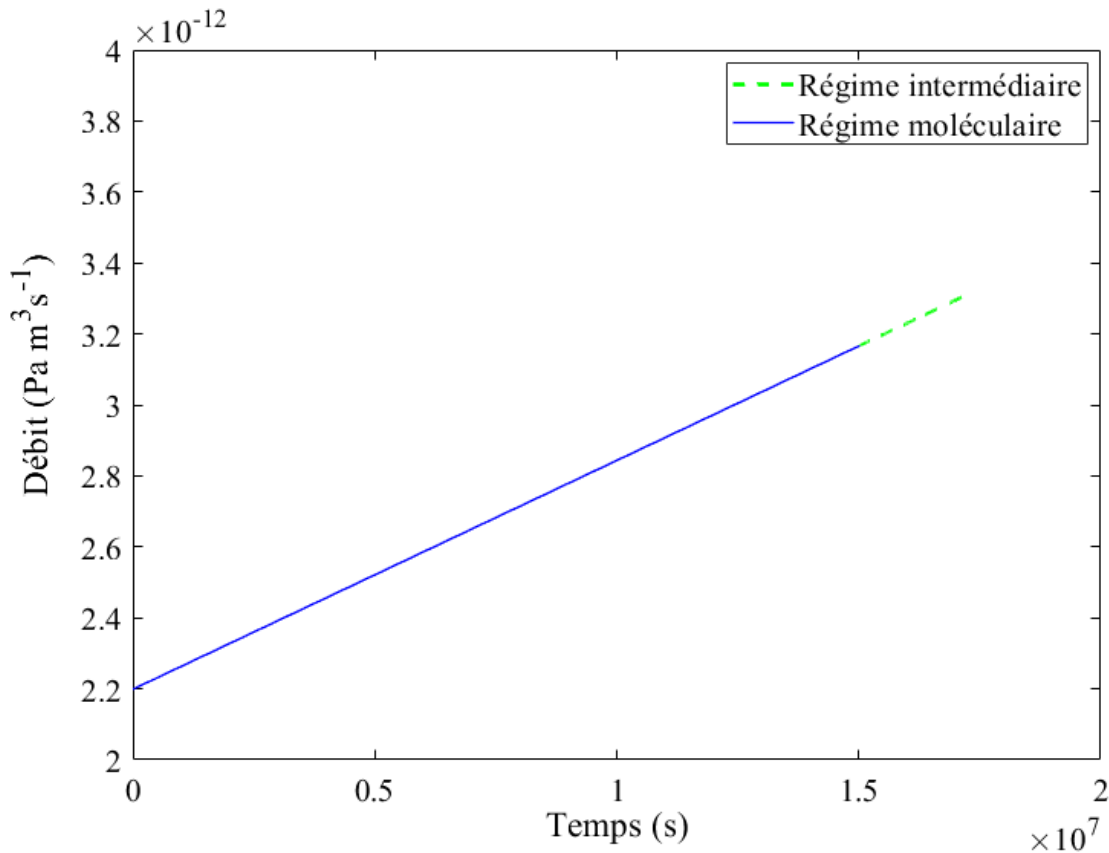


Figure 4-26 : Evolution du régime d'écoulement moléculaire en intermédiaire en fonction du temps de vidange pour une rupture initiale de taille  $d_f = 10^{-8} m$ .

Pour une taille de fuite initiale de  $10^{-8} m$ , le relâchement est moléculaire au début et sa cinétique de relâchement est légèrement croissante du fait de l'augmentation de la pression dans les volumes libres. Cela est dû au fait que la fuite n'est pas assez grande pour contrebalancer l'augmentation de pression dans les volumes libres  $q(d_f, P(t)) < \alpha k_B T$ . Le régime moléculaire évolue alors vers un régime laminaire au bout de 175 jours après le début de la fuite considéré comme origine des temps.

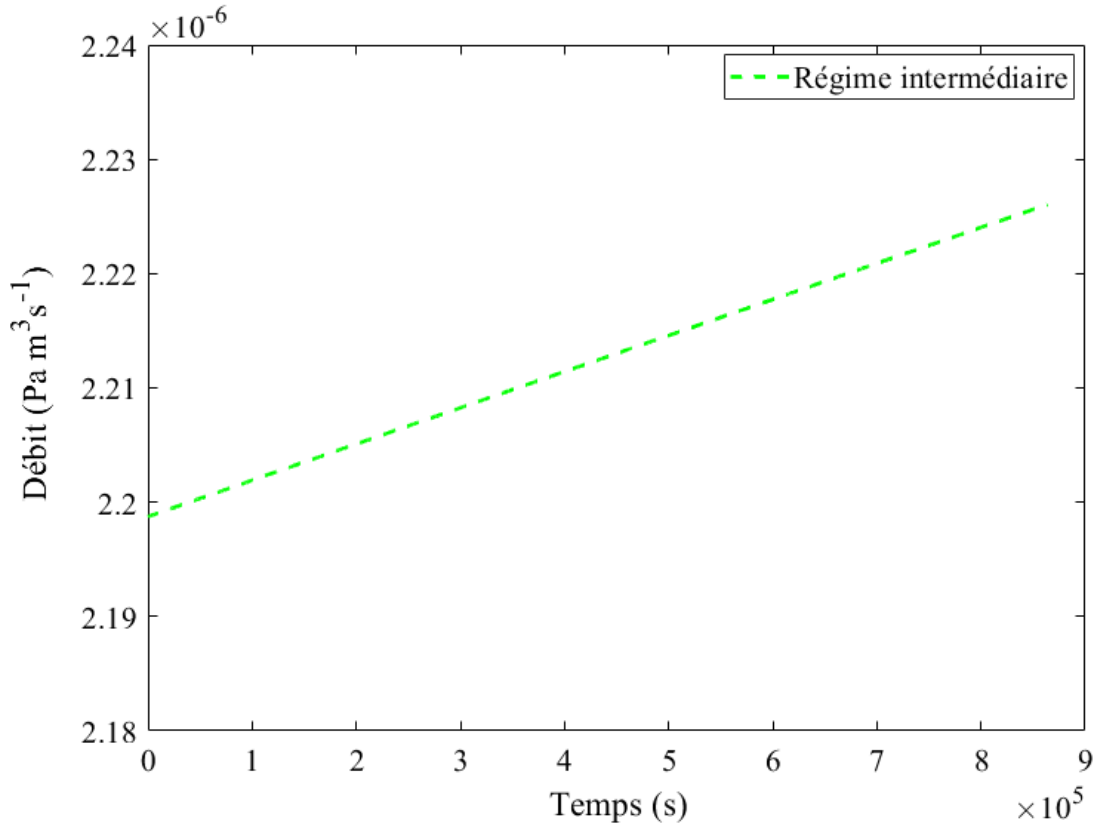


Figure 4-27 : Evolution du régime d'écoulement intermédiaire en fonction du temps de vidange pour une rupture initiale de taille  $d_f = 10^{-6} m$ .

Pour une taille de fuite initiale de  $10^{-6} m$ , le relâchement est en régime intermédiaire et le débit en écoulement est légèrement croissant. A taille de défaut fixe, un quasi-équilibre des pressions s'établit de part et d'autre du réservoir et a pour conséquence de préserver la cinétique de relâchement en mode intermédiaire, même pour des temps de fuite très grands (> 400 jours).

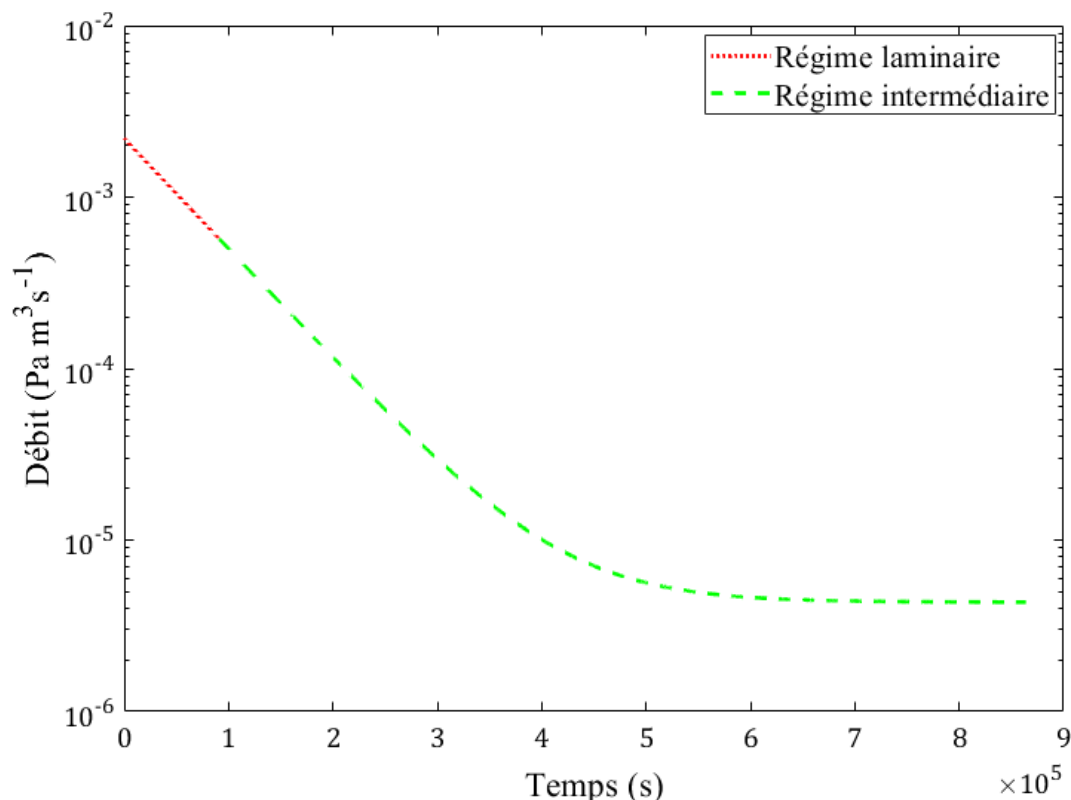


Figure 4-28 : Evolution du régime d'écoulement laminaire en intermédiaire en fonction du temps de vidange pour une rupture initiale de taille  $d_f = 10 \mu m$ .

Pour une taille de fuite initiale de  $10 \mu m$ , le relâchement est laminaire au début et se prolonge vers une cinétique de relâchement intermédiaire au bout de quelques heures. La contre-pression exercée par le sodium contrebalance l'évolution de la pression interne des volumes libres.

Le retour d'expérience français des centrales RNR-Na [32][92][93] met en évidence un régime de fuite gazeuse de type intermédiaire pour un diamètre équivalent mesuré de  $1 \mu m$ , un régime laminaire pour un diamètre équivalent de  $4 \mu m$ . Enfin, et pour des fuites plus importantes, le régime de fuite passera de laminaire à intermédiaire au cours de la vidange. Ce retour corrobore avec les cinétiques de relâchement mises en évidence dans cette section. Dans la suite, nous proposerons d'estimer la fraction relâchée au travers une fuite de taille  $d_f = 10 \mu m$ .

#### 4. Le relâchement et le transport jusqu'au poste de mesure

Soit une rupture de gaine se produisant au temps  $t_{irr}$  après le démarrage du réacteur, le nombre d'atomes relâchés au travers de la fuite de l'isotope  $x$ , du métastable  $M$  et du père  $P$  s'écrit de manière similaire aux équations de populations (19), soit :

$$\begin{aligned}
 \frac{dN'_{x,r}(t)}{dt} &= -\lambda_x N'_{x,r}(t) + \lambda_P N'_{P,r}(t) + \lambda_M N'_{M,r}(t) + f_x(t) \\
 \frac{dN'_{M,r}(t)}{dt} &= -\lambda_M N'_{M,r}(t) + f_M(t) \\
 \frac{dN'_{P,r}(t)}{dt} &= -\lambda_P N'_{P,r}(t) + f_P(t)
 \end{aligned}
 \tag{24}$$

Avec

$N'_{x,r}, N'_{M,r}, N'_{P,r}$  les nombres de noyaux relâchés respectivement de  $x$ ,  $M$  et  $P$ ,

$\lambda_x, \lambda_M, \lambda_P$  les constantes de décroissance respectives de  $x$ ,  $M$  et  $P$ ,

$f_x, f_M, f_P$  les taux de relâchement à travers la fuite respectifs de  $x$ ,  $M$  et  $P$  homogènes à un nombre de noyaux quittant la fuite par unité de temps, soit  $\text{at.s}^{-1}$  :

$$f_{x,M,P}(t) = q(t) \frac{N_{x,M,P}(t)}{P_0 V}
 \tag{25}$$

Avec

$N_{x,M,P}(t)$  le nombre d'atomes de  $x$ ,  $M$  et  $P$  présent dans les volumes libres à l'instant  $t$  et évalué à partir du système d'équations (19),

$q$  le débit de fuite suivant une cinétique de relâchement, laquelle est fonction de la taille de la fuite  $d_f$ ,

$P_0$  la pression du gaz dans les volumes libres à  $t_{irr}$ , évalué par le code d'évolution DARWIN à  $t_{irr}$ .

$V$  le volume libre total de l'aiguille.

Les atomes de gaz relâchés sont entraînés par le fluide caloporteur circulant dans le cœur avec un débit  $Q_{Na}$  [75]. Il convient de distinguer deux cas.

Le premier cas concerne la phase de bouffée et l'analyse se fait en mode de surveillance globale (appelé mode GN sur Phénix) où le sodium de tous les assemblages est mélangé telle que la concentration est égale à :

$$C_{x,r}(t) = \frac{dN_{x,r}(t)}{Q_{Na}}
 \tag{26}$$

$N_{x,r}$  étant le nombre de noyaux relâchés, calculé par le système d'équations (24).

Le deuxième cas concerne la phase de surveillance ciblée d'un assemblage (appelé mode G1 sur Phénix) où le prélèvement d'un assemblage isolé est réalisé *via* le sélecteur du bouchon LRG. Sachant que le débit circulant dans un assemblage est  $Q_{Na} / n_{ass}$ , où  $n_{ass}$  est le nombre d'assemblages contenu dans le cœur, la concentration de l'isotope  $x$  dans le sodium prélevé devient :

$$C_{x,r}(t) = n_{ass} \frac{\frac{dN_{x,r}(t)}{dt}}{Q_{Na}} \quad (27)$$

Ensuite, le sodium est acheminé vers le dégazeur où une surface libre de sodium est balayée par de l'argon circulant avec un débit  $Q_{Ar}$ . Soit  $Q_{Na,2}$  le débit de prélèvement du sodium, le courant d'atomes du produit de fission  $x$  libéré dans l'argon est

$$\frac{dN_{x,Na/Ar}(t)}{dt} = C_{x,r}(t)Q_{Na,2} \quad (28)$$

Et la concentration du produit de fission  $x$  dans l'argon vecteur est

$$C_{x,Ar,1}(t) = \frac{\frac{dN_{x,Na/Ar}(t)}{dt}}{Q_{Ar}} \quad (29)$$

En combinant les équations de (26) à (29), et en ajoutant le facteur de décroissance radioactive lors du transit de la fissure au volume de détection suivant un temps  $t_r$ , l'activité de l'isotope  $x$  dans le volume mesuré par la diode germanium est

$$A_{x,Ar}(t) = \left( \frac{dN_{x,r}(t)}{dt} \right) \frac{n_{ass} \lambda_x Q_{Na,2}}{Q_{Ar} Q_{Na}} \exp(-\lambda_x t_r) \quad (30)$$

Où  $t_r$  est le temps de transit de la fissure au point de mesure. Notons que dans le cas du suivi des bouffées en mode de détection globale, le terme  $n_{ass}$  ne sera pas considéré dans l'équation (30).

## 5. Terme source des produits de fission

Les figures 4-29 et 4-30 montrent l'évolution des activités volumiques obtenues au poste de mesure en fonction du temps de vidange  $t$  pour une fuite  $d_f = 10 \mu m$  et un temps de transit  $t_r = 60 s$  survenant au bout de 410 jours d'irradiation.

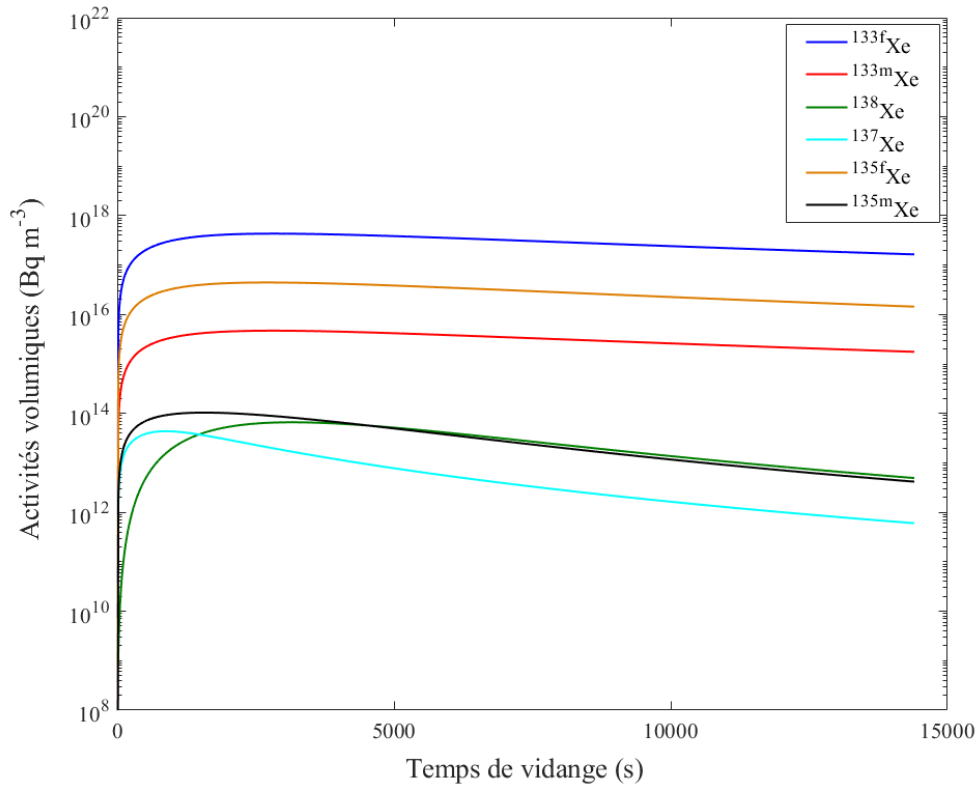


Figure 4-29 : Evolution des activités volumiques attendues en fonction du temps de vidange pour les isotopes du xénon intervenant à  $t_{irr}$ , pour  $d_f = 10 \mu m$  et pour un temps de transit  $t_r = 60 s$ .

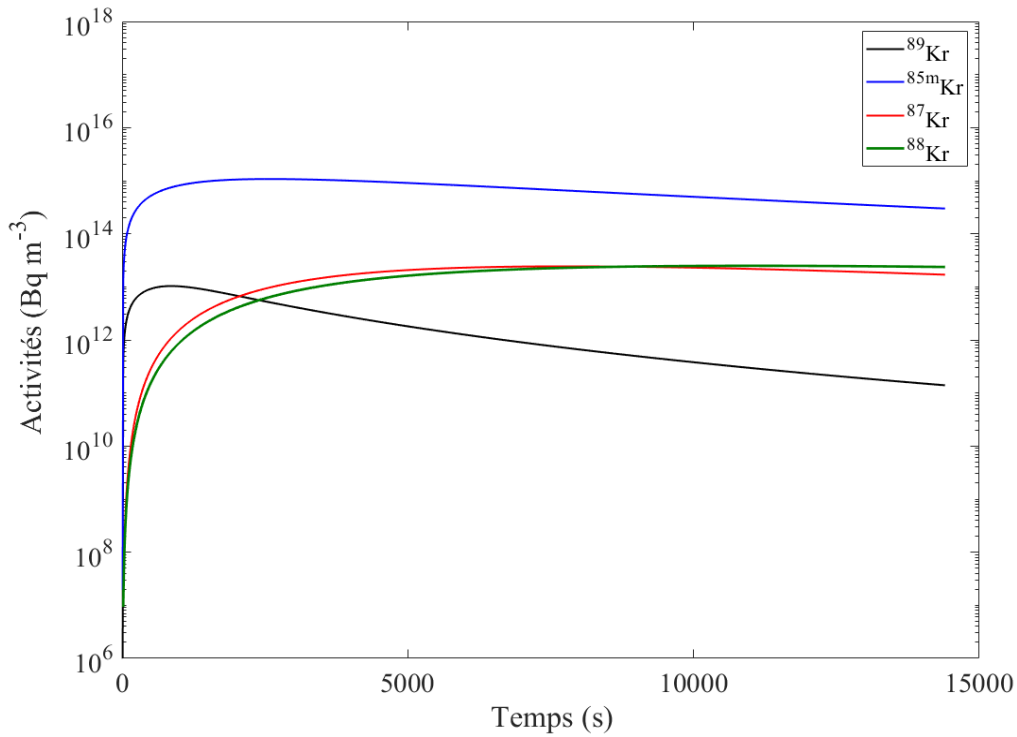


Figure 4-30 : Evolution des activités volumiques attendues en fonction du temps de vidange pour les isotopes du krypton intervenant à  $t_{irr}$ , pour une fuite  $d_f = 10 \mu m$  et pour un temps de transit  $t_r = 60 s$ .



En mode de prospection globale « GN », ce modèle donne le maximum de l'activité attendue due à la bouffée, laquelle servira alors à la détection globale et précoce de la perte d'étanchéité et la localisation de l'assemblage fuyard. Après cette étape de dépressurisation, le modèle estime l'activité asymptotique attendue quand le relâchement est piloté par la seule diffusion continue des produits de fission. En mode de prospection ciblée « G1 », cette valeur d'activité permettra alors de diagnostiquer la rupture *via* la courbe  $R/B$  et permettra, si l'on arrive à prouver la mesurabilité des vies courtes (régime de recul), à déceler un contact sodium/combustible. La figure 4-31 illustre ces deux modes de relâchement pour le  $^{89}\text{Kr}$ .

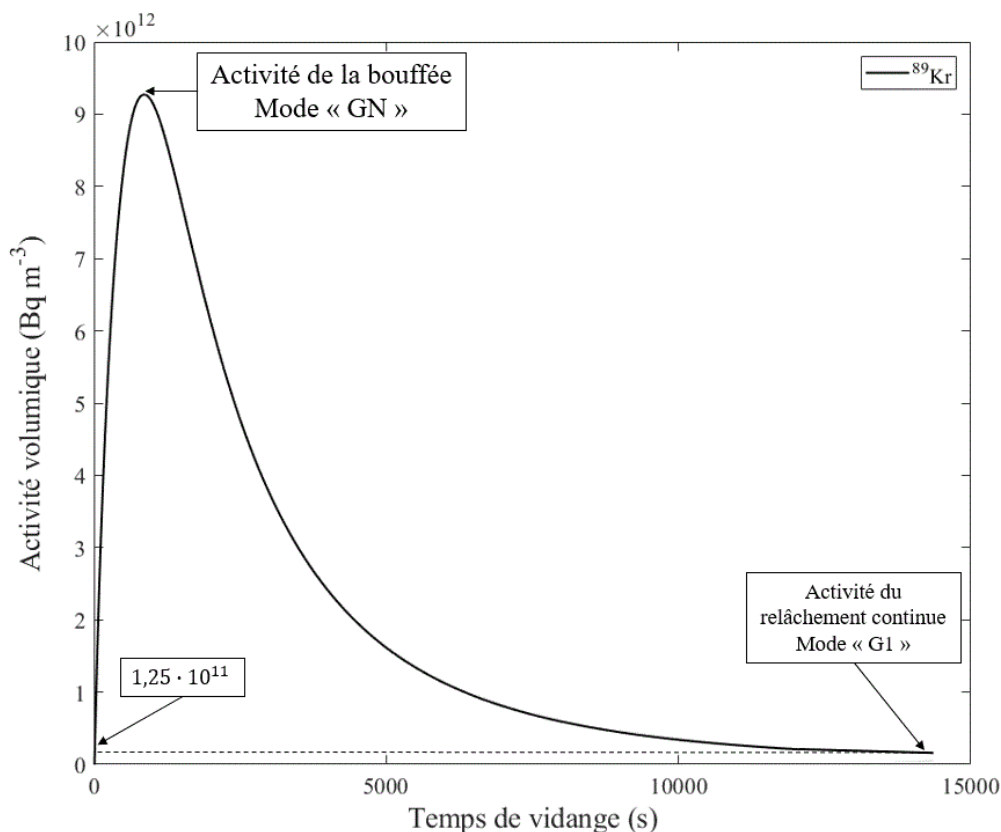


Figure 4-31 : Evolution de l'activité volumique du  $^{89}\text{Kr}$  en fonction du temps de vidange pour une fuite  $d_f = 10 \mu\text{m}$  intervenant au temps  $t_{irr}$  et pour un temps de transit  $t_r = 60 \text{ s}$ .

Les résultats de la figure 4-31 montrent des tendances cohérentes avec le retour d'expériences des ruptures ; avec une phase bouffée, observée expérimentalement, laquelle peut être décelée par le prélèvement d'un mélange de tous les assemblages en mode de surveillance globale, et une phase de relâchement continue, laquelle peut signer précocement une mise en contact entre le sodium et le combustible *via* un prélèvement ciblé de l'assemblage défectueux et par détection des périodes courtes ( $^{137}\text{Xe}$  et  $^{89}\text{Kr}$ ).

Le tableau 4-3 récapitule les activités théoriques attendues  $A_{PF}$  pour la bouffée et le mode de relâchement continu pour l'ensemble des isotopes d'intérêt du xénon et du krypton et pour un temps de transit  $t_r = 60 \text{ s}$ .

Tableau 4-3 : Activités volumiques attendues au poste de mesure des modes de surveillance globale « GN » et ciblée « G1 » pour une taille de fuite  $d_f = 10 \mu\text{m}$  et un temps de transit  $t_r = 60 \text{ s}$ .

Isotope	Activité « Surveillance globale » (Bq.m <sup>-3</sup> )	Activité « Surveillance ciblée » (Bq.m <sup>-3</sup> )
<sup>133</sup> Xe	2,00E+15	1,64E+17
<sup>133m</sup> Xe	2,17E+13	1,76E+15
<sup>89</sup> Kr	4,27E+10	1,25E+11
<sup>138</sup> Xe	3,05E+11	4,94E+12
<sup>137</sup> Xe	2,01E+11	6,02E+11
<sup>85m</sup> Kr	4,95E+12	2,98E+14
<sup>135</sup> Xe	2,04E+14	1,44E+16
<sup>135m</sup> Xe	4,78E+11	4,17E+12
<sup>87</sup> Kr	1,12E+11	1,69E+13
<sup>88</sup> Kr	1,15E+11	2,36E+13

## 6. Conclusion

Ce chapitre détaille l'élaboration d'un modèle du comportement des produits de fission dans un réacteur type RNR-Na. Après sélection des isotopes d'intérêt suivant un facteur de mérite couplé au retour d'expérience, un calcul d'évolution DARWIN associé au code Monte Carlo TRIPOLI-4 a permis d'estimer l'inventaire du mélange gazeux pour un cœur RNR-Na type CFV3 à un temps d'irradiation donné. Quand le système est fermé, *i. e* en absence de la rupture, l'inventaire en produits de fission gazeux a été calculé au moyen des équations différentielles de Bateman. Après ouverture du système, les cinétiques de relâchement de l'inventaire au travers la fuite, considérée circulaire, ont été modélisées et commentées. Ce modèle implémente également le transport de la fraction relâchée, depuis le lieu de la rupture, dans le sodium suivant un débit  $Q_{Na}$ , son dégazage suivant un débit  $Q_{Ar}$ , puis son arrivée au volume de mesure après un temps de transit  $t_r$ . Ainsi, des activités attendues de produits de fission  $A_{PF}$  ont été estimées pour les modes de prospection globale et ciblée.

Après avoir caractérisé le terme source des produits de fission dans le volume de mesure, nous évaluerons, dans la suite de ce manuscrit, leur mesurabilité dans le fond de diffusion Compton associé aux produits d'activation par la mise au point d'une instrumentation bas bruit. L'apport d'une telle instrumentation pour mesurer, à un stade précoce, l'activité de la bouffée dans le cadre d'une prospection globale sera exposé, et surtout, pour mesurer des isotopes de courte période pouvant signer précocement une mise en contact combustible/sodium par détection rapide d'un phénomène de recul.



# CHAPITRE V

## CONCEPTION ET VALIDATION D'UN SYSTEME A SUPPRESSION COMPTON

La spectrométrie gamma donne accès à une estimée de l'activité isotopique. Elle repose sur l'analyse des pics d'absorption totale (PAT) d'intérêt, ce qui nécessite de les déconvoluer des pics voisins interférents et également de les extraire du fond de diffusion Compton. Ce continuum Compton est marqué par des fluctuations aléatoires (statistique Poisson du comptage nucléaire) pouvant masquer les PATs de faibles intensités. Cette déconvolution est donc parfois rendue complexe, en particulier dans la région de basse énergie du spectre ( $< 200$  keV), du fait de l'intensité du continuum et de ses fluctuations associées<sup>7</sup> dans cette plage d'énergie. Le rapport PAT (signal) sur fond Compton (bruit) est d'autant plus favorable que le détecteur est résolu en énergie. Ainsi, la diode germanium (HPGe) est la technologie la plus adaptée à la spectrométrie gamma. Cependant, il existe des environnements de mesure dans lesquels l'impact de ce continuum est rédhibitoire par rapport aux signaux que l'on souhaite mesurer. Dans notre problématique, cette difficulté s'illustre par le besoin de mesurer les produits de fission relâchés lors d'une perte d'étanchéité d'une gaine combustible, tels que le  $^{133}\text{Xe}$  (81 keV) ou le  $^{88}\text{Kr}$  (196,3 keV), dans un continuum Compton engendré par les produits d'activation du fluide caloporteur (*e.g.*  $^{41}\text{Ar}$  (1293,6 keV),  $^{23}\text{Ne}$  (440 keV)) et les PFs émetteurs de photons de plus haute énergie. Le bruit aléatoire de ce continuum Compton pénalise l'analyse rapide du niveau d'intégrité du combustible nucléaire.

Pour améliorer la spectrométrie des produits de fission, nous proposons d'étudier l'apport potentiel d'un Système à Suppression Compton (SSC) pour réduire l'intensité du bruit Compton et par là-même l'impact de ses fluctuations. Ainsi, ce chapitre décrit les étapes de conception et de dimensionnement d'un tel système. Après l'analyse des options technologiques du détecteur de garde, l'étude présente le dimensionnement d'un SSC suivant la maximisation des facteurs de mérite intrinsèques à celui-ci. Au cœur de ces travaux, un modèle numérique du SSC a été élaboré. Il a pour fondement la mise au point d'un traitement des histoires détaillées de chaque particule générée et transportée par le code de transport Monte-Carlo MCNP6. La validation expérimentale dudit modèle est ensuite détaillée. Ce point de validation expérimental autorisera l'utilisation du modèle à l'étude d'implantation de la spectrométrie gamma SSC pour la problématique de la thèse. Enfin, nous présentons le gain attendu sur le facteur de mérite associé aux SSC en mettant en œuvre une version optimisée de ce système.

---

<sup>7</sup> Les pics sont masqués par les fluctuations statistiques du bruit « Poisson » qui évolue suivant la racine carrée de l'intensité.

## 1. Etat de l'art, facteurs de mérite et choix du détecteur de garde

Dans l'introduction, nous avons motivé le choix d'une architecture de mesure de type système à suppression Compton 'SSC' à base d'un spectromètre HPGe. La première étape de cette étude consiste donc à définir la nature du détecteur de garde. Après avoir rappelé le principe d'un SSC et introduit les facteurs de mérite pertinents pour évaluer les performances d'un tel concept, nous dressons un état de l'art succinct des SSC mis en œuvre en spectrométrie gamma de haute résolution et bas bruit Compton.

### 1.1. Principe d'un SSC en anti-coïncidence

Le fond du spectre, pris dans sa totalité, admet quatre origines principales : (i) l'émission gamma de l'environnement de mesure (radioactivité naturelle et émetteurs parasites), (ii) la radioactivité intrinsèque de l'ensemble formé par le spectromètre primaire, (iii) les impuretés radioactives présentes dans les écrans qui entourent le spectromètre et iv) les rayonnements cosmiques [94]. L'atténuation des rayonnements X et gamma met en jeu deux processus physiques principaux : l'effet photoélectrique et l'effet Compton. Tandis qu'un dépôt total d'énergie dans le volume détecteur a pour résultat la formation des pics d'absorption totale PATs, les dépôts d'énergie partiels alimentent le fond du spectre sous la forme d'un continuum non uniforme et bruité, susceptible de masquer des pics d'absorption totale à plus basse énergie [94].

L'enjeu d'une spectrométrie gamma bas bruit est donc de favoriser la formation des PAT tout en minimisant le niveau du continuum Compton. A cette fin, l'approche la plus courante consiste à dimensionner un blindage passif autour du spectromètre, formé par un matériau de densité et de numéro atomique élevés [95]. Un tel blindage passif (typiquement en plomb ou en tungstène) est très performant pour filtrer le bruit de l'environnement de mesure mais pas le bruit de diffusion Compton induit par les rayonnements de la source d'intérêt elle-même (il aura même tendance à amplifier ce bruit de diffusion). Or, compte tenu de l'activité intense des produits d'activation du sodium primaire, cette composante est prépondérante dans notre problématique. C'est la raison pour laquelle les systèmes à suppression Compton ont été introduits dans le cadre de la mesure bas bruit et trouvent un intérêt évident dans ces travaux de thèse où l'origine prédominante du bruit provient de la source elle-même. Dans de tels systèmes, un autre détecteur, dit « détecteur de garde », est placé autour du spectromètre primaire [96]. Tout couple d'impulsions enregistrées au niveau du spectromètre primaire et du détecteur de garde à l'intérieur d'une fenêtre de coïncidence temporelle prédéfinie est analysé comme la signature d'un dépôt d'énergie partiel à l'intérieur du spectromètre primaire et, par conséquent, exclu du spectre en sortie de la chaîne puisque non susceptible de concourir à la formation d'un PAT. Un tel traitement du signal nucléaire est appelé filtrage en anti-coïncidence [97].

## 1.2. Facteurs de mérite d’un SSC

Les références bibliographiques liées à cette problématique font état d’une certaine variété de facteurs de mérite dédiés à la caractérisation des SSC. Les facteurs de mérite (FoM pour *Figure of Merit* en anglais) les plus couramment utilisés reflètent aussi bien la maximisation de la statistique des PAT que la minimisation du continuum [98][99]. Sur ce fondement, nous retenons dans le cadre de cette étude le facteur de mérite  $FSC$  pour l’évaluation de notre SSC. Il est défini en deux étapes :

- le rapport pic-sur-Compton, noté  $\frac{P}{C}$  : il s’agit du rapport entre le nombre de coups dans le PAT d’intérêt (défini entre le  $m^{\text{ème}}$  et  $n^{\text{ème}}$  canal) et le nombre de coups dans une plage spectrale correspondant à la région Compton (entre le  $k^{\text{ème}}$  et le  $j^{\text{ème}}$  canal) à gauche du PAT. Si nous notons  $N$  le nombre de coups enregistrés dans le  $i^{\text{ème}}$  canal, ce facteur  $\frac{P}{C}$  s’écrit

$$\frac{P}{C} = \frac{1}{n - m + 1} \frac{\sum_{i=m}^n N_i}{\frac{1}{j - k + 1} \sum_{i=k}^j N_i} \quad (31)$$

- le facteur de suppression Compton associé à  $\frac{P}{C}$ , noté  $FSC$  : c’est le rapport du  $\frac{P}{C}$  après filtrage en anti-coïncidence et du  $\frac{P}{C}$  sans filtrage, soit

$$FSC = \frac{\left(\frac{P}{C}\right)_{\text{filtré}}}{\left(\frac{P}{C}\right)_{\text{non-filtré}}} \quad (32)$$

Suivant l’application, la région du bruit Compton  $C$  pour le calcul du facteur de mérite peut être prise dans sa totalité (entre le premier et le dernier canal à gauche du PAT) ou focalisée sur une région d’intérêt bien spécifique à la mesure. Concernant les radio-isotopes sélectionnés pour l’étude de la réduction Compton, les candidats les plus courants sont le  $^{137}\text{Cs}$  (raie gamma à 661,7 keV) et le  $^{60}\text{Co}$  (deux raies gamma coïncidentes à 1173,2 keV et 1332,5 keV) représentatifs du bruit que l’on cherche à filtrer dans le cadre de ces travaux ( $^{23}\text{Ne}$  : 440 keV,  $^{41}\text{Ar}$  : 1294 keV).

## 1.3. Matériau pour le détecteur de garde

Nous avons dressé un état de l’art synthétique des éléments de conception prédominants en matière de systèmes à suppression Compton. Ces derniers correspondent au facteur de suppression Compton permis ainsi qu’à la nature et aux dimensions du détecteur de garde. Une synthèse des données caractéristiques des SSC rapportées dans la littérature est présentée dans le tableau 5-4. Par rapport à notre problématique de thèse, nous avons uniquement considéré des SSC de haute résolution intégrant un spectromètre primaire à base de germanium.

Tableau 5-4 : Propriétés des SSC de haute résolution décrits dans la littérature.

Spectromètre primaire (SP)		Détecteur de garde (DG)			Facteurs de mérite			Références
Type	Efficacité relative (%)	Type	Diamètre (mm)	Longueur (mm)	<sup>137</sup> Cs	<sup>60</sup> Co	<sup>24</sup> Na	
HPGe	-	NaI	-	-	4.28	2.84	-	[98]
HPGe	-	BGO	-	-	4.71	8.36	-	[98]
HPGe	10,8	NaI	25,4	30,6	12,6	32	-	[101]
HPGe	25	NaI	22,9	25,4	5,2	-	7	[102]
HPGe	24	BGO	16,4	27,6	-	39,5	-	[103]
HPGe	20-25 %	BGO	12,7	15,2	-	4	-	[104]
HPGe	20	NaI	30	35	-	7,2	-	[105]
HPGe	20	NaI	30	35	-	7,4	-	[106]
HPGe	25	BGO/NaI	-	-	-	11	-	[107]

En considérant les données du tableau 5-4, il ressort que les scintillateurs NaI(Tl) et BGO (Bi<sub>4</sub>Ge<sub>3</sub>O<sub>12</sub>) sont les détecteurs de garde les plus couramment utilisés dans les systèmes HPGe-SSC [98], [101]-[107]. De tels détecteurs ont une fonction de veto et donnent accès à des facteurs de suppression compris entre 4 et 39,5 en fonction de l’application et sa configuration géométrique, du radio-isotope, du facteur de mérite et de la région Compton *C* choisis. La sélection d’un type de détecteur de garde est fondée sur un ensemble de propriétés physiques, dont les principales sont listées dans le tableau 5-5 pour le NaI(Tl), le BGO, le LaBr<sub>3</sub>(Ce) et les scintillateurs plastiques à base de polyvinyltoluène (PVT).

Tableau 5-5 : Propriétés physiques des matériaux utilisés comme détecteur de garde dans les SSC.

Propriété physique \ Matériau	NaI(Tl)	BGO	LaBr <sub>3</sub> (Ce)	Plastique
Densité (g.cm <sup>-3</sup> )	3,67	7,13	5,06	1,03
Rendement lumineux (photons.keV <sup>-1</sup> )	38	8	63	10
Temps de décroissance (ns)	250	300	25	2
Résolution relative en énergie (@ 662 keV)	7 %	9 %	3 %	-
Numéro atomique effectif Z <sub>eff</sub>	53,18	75	47	5,70

La suppression Compton repose sur la détection du plus grand nombre possible de photons diffusés à l’intérieur détecteur de garde. L’avantage est pour le BGO, lequel présente un numéro atomique effectif et une masse volumique élevés par rapport aux autres matériaux.

De surcroît, les SSC destinés aux mesures de terrain ou visant à équiper l’instrumentation d’un réacteur doivent être *a minima* compacts, ce qui peut tendre, en raison de leur faible densité, à pénaliser les scintillateurs plastiques : à titre d’illustration, un taux d’atténuation donné requiert un parcours sept fois plus important dans le PVT que dans le BGO. Celui-ci possède également une densité supérieure à celle du LaBr<sub>3</sub>(Ce) et du NaI(Tl) : par conséquent, l’atténuation de 95 % d’un faisceau de photons de 1 MeV requiert jusqu’à 145 mm de NaI(Tl) ou 100 mm de LaBr<sub>3</sub>(Ce), contre seulement 65 mm de BGO [98].

Les scintillateurs  $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$  présentent un temps de décroissance plus faible que ceux intrinsèques au BGO ou au  $\text{NaI}(\text{Tl})$ , ce qui leur permet d'opérer avec un taux d'empilement réduit à haut taux de comptage. Toutefois, la disponibilité de grands volumes de ce matériau limite grandement l'utilisation des scintillateurs  $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$  comme détecteurs de garde.

De même, l'amélioration de la résolution en énergie offerte par les scintillateurs  $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$  et  $\text{NaI}(\text{Tl})$  par rapport au BGO n'a d'importance que lorsque le détecteur de garde est utilisé comme spectromètre, ce qui n'est pas le cas dans l'architecture du SSC que nous considérons ici. Les précédents arguments ont donc motivé le choix du BGO pour équiper le SSC dans le cadre d'une spectrométrie gamma destinée à la détection des ruptures de gaine.

### 1.4. Blindage passif

Dans de nombreux systèmes à suppression Compton de la littérature, le bruit de fond environnemental est réduit en enveloppant le détecteur primaire et le blindage actif dans une épaisseur de blindage passif dense, typiquement 10-15 cm de plomb (Pb). A titre d'illustration, l'ajout d'un écran de 10 cm de Pb a rendu possible, dans leur application, une réduction du fond Compton d'un facteur 50 dans le SSC HPGe/ $\text{NaI}(\text{Tl})$  de la référence [101]. De plus, ces blindages passifs sont souvent couverts de quelques millimètres de cuivre [108], afin d'atténuer les raies X du Pb entre 75 et 80 keV.

Il est à noter que, dans le cadre de cette thèse, le bruit de la mesure que l'on cherche à filtrer est généré par la source elle-même. Néanmoins, nous considérons une épaisseur externe de Pb extérieur, servant à atténuer le bruit de fond environnant et à limiter le débit de dose généré par le poste de mesure (problématique de radioprotection), afin que l'étude soit bien représentative du poste de mesure RNR-Na final.

## 2. Modèle numérique du SSC HPGe/BGO

Après avoir sélectionné la nature du spectromètre et du détecteur de garde, nous décrivons dans cette section l'élaboration et la pré-validation numérique d'un modèle de système à suppression Compton, de type HPGe/BGO, par la méthode Monte-Carlo.

### 2.1. Briques matérielles pour la construction du modèle

Le modèle du spectromètre primaire est basé sur un détecteur HPGe commercialisé par la société MIRION Technologies, et référencé REGe1020 [109]. Afin de déterminer les dimensions et positions relatives des composants de la diode, nous avons associé les paramètres fournis par le constructeur aux résultats d'une radiographie X de la diode réalisée au sein de notre institut (figure 5-32 a). Les 22 paramètres du modèle de la diode ont ensuite été ajustés itérativement, à partir des comptages obtenus avec une source étalon d' $^{152}\text{Eu}$ , suivant la méthode numérique des recuits simulés décrite dans le brevet CEA LIST [110]. Le modèle retenu représente le cristal de Ge comme un cylindre de dimensions 4,64(H)  $\times$  4,62( $\emptyset$ ) mm,



surmonté d'une fenêtre en béryllium de 0,5 mm d'épaisseur. Le capot en aluminium, le doigt froid en cuivre, les zones mortes et les espaces vides à l'intérieur sont également modélisés.

Le spectromètre primaire est entouré d'un anneau unique de BGO fournit par la société SCIONIX : le cristal a un rayon interne de 25 mm et une hauteur de 100 mm, et est monté à l'intérieur d'une protection en aluminium de 3 mm d'épaisseur. Un château en plomb d'une épaisseur de 11,5 cm, contenant le spectromètre HPGe et le détecteur de garde BGO, est ajouté au modèle en vue de la validation expérimentale de ce dernier. La géométrie modélisée est représentée sur les figure 5-32 b) et c). Le cristal HPGe est représenté en bleu, le doigt froid en rouge, le BGO en vert, la protection en aluminium du HPGe en noir et celle du BGO en gris.

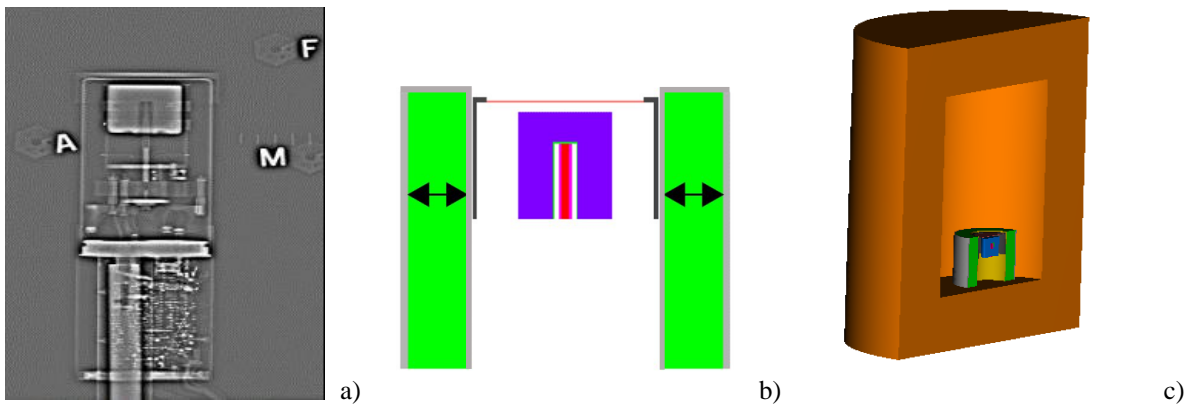


Figure 5-32 : a) Radiographie X de la diode HPGe, b) Visualisation en coupe 2-D (Moritz 1.23) du modèle matériel MCNP6.1, et c) Visualisation en coupe 3-D du SSC à l'intérieur du château de Pb (Moritz 1.23).

## 2.2. Elaboration d'un algorithme de filtrage des anti-coïncidences

MCNP6.1 est une plateforme logicielle développée par *Los Alamos National Laboratory*, qui s'appuie sur la méthode de Monte-Carlo pour simuler le transport des particules dans la matière [111]. Dans le cadre de cette étude, la grandeur de sortie d'intérêt est donnée par le *pulse height tally* du code MCNP (fonction de réponse 8), correspondant au rendement de dépôt d'énergie spectral  $\tau_{MCNP}(E)$  et exprimé en dépôts d'énergie par particule source (dans notre cas, par rayonnement gamma) et par classe d'énergie ( $\gamma^{-1}$ ). Pour rendre compte de la résolution spectrale expérimentalement observée, la carte *Gaussian Energy Broadening* (GEB) est ajoutée aux simulations Monte-Carlo [112]. L'élargissement gaussien du PAT, centré sur l'énergie  $E$ , est caractérisé par sa largeur totale à mi-hauteur  $LTHM(E)$ . Cette dernière est spécifiée dans la carte GEB au moyen de deux paramètres  $a$  et  $b$  sous la forme

$$LTHM(E) = a + b\sqrt{E} \quad (33)$$

Le paramètre  $a$  est lié au bruit électronique (indépendant de l'énergie), tandis que  $b$  dépend de la statistique associée au nombre de porteurs de charge créés à l'intérieur du semi-conducteur

avec leurs possibles corrélations (*cf.* Facteur de Fano) [113]. La valeur de ces paramètres a été déterminée *via* un étalonnage de la résolution en énergie de la diode REGe1020 au moyen d’une source d’ $^{152}\text{Eu}$ . L’ajustement des PATs par une fonction gaussienne de variance  $\left(\frac{LTHM}{2.35}\right)^2$  par la méthode des moindres carrés donne les valeurs  $\{a = 0,025 \text{ MeV}; b = 1,84 \text{ MeV}^{-1/2}\}$ . Le rendement de dépôt d’énergie  $T_{MNCP}(E)$  au niveau du pic d’absorption totale à l’énergie  $E$  est estimé par :

$$T_{MNCP}(E) = \sum_{E_i \in [E-1,25LTHM(E); E+1,25LTHM(E)]} \tau_{MCNP}(E_i) \quad (34)$$

Le schéma numérique décrit ci-dessus est suffisant pour obtenir, par simulation Monte Carlo, des estimées des grandeurs  $P_{non-filtré}$  et  $C_{non-filtré}$  utilisées dans l’équation (32). En revanche, il ne donne pas accès aux estimées  $P_{filtré}$  et  $C_{filtré}$  après filtrage en anti-coïncidence. En effet, la fonction réponse *pulse height tally* du code MCNP6 ne fournit qu’une estimation macroscopique d’une grandeur physique, en l’occurrence la réponse du capteur, évaluée à partir d’un grand nombre de tirages aléatoires. Cette fonction de réponse ne permet donc pas de travailler à partir de l’historique d’interactions complet des particules prises une à une. Or, ce travail est nécessaire à l’identification des événements multiples, appartenant à l’histoire d’une même particule et se produisant dans l’un puis l’autre des deux détecteurs, et qui doivent être rejetés par le filtre en anti-coïncidence.

Les fichiers de sortie *Particle TRAck* ‘PTRAC’ contiennent les données décrivant l’historique intégral des interactions des particules avec la matière, de la génération à la disparition de ces dernières [111]. Nous avons développé, dans le cadre de cette thèse, un code dédié à la lecture et à l’extraction automatique des informations qui nous intéressent dans le contenu des fichiers PTRAC (*cf.* Annexe A), notamment, pour une histoire  $i$  donnée et pour chaque interaction  $j$  :

- le type d’interaction subi par la particule,
- le numéro de la cellule dans laquelle cette interaction a lieu,
- les énergies  $E(j)$  et  $E(j-1)$  de la particule respectivement avant et après l’interaction.

Le traitement de ces informations d’intérêt permet de calculer, pour chaque particule source, l’énergie déposée dans la zone active de la diode germanium et dans le scintillateur BGO. Finalement, en répétant l’opération sur l’ensemble des particules générées, les spectres en énergie filtrés sont obtenus suivant le schéma de calcul des figures 5-33 et 5-34.

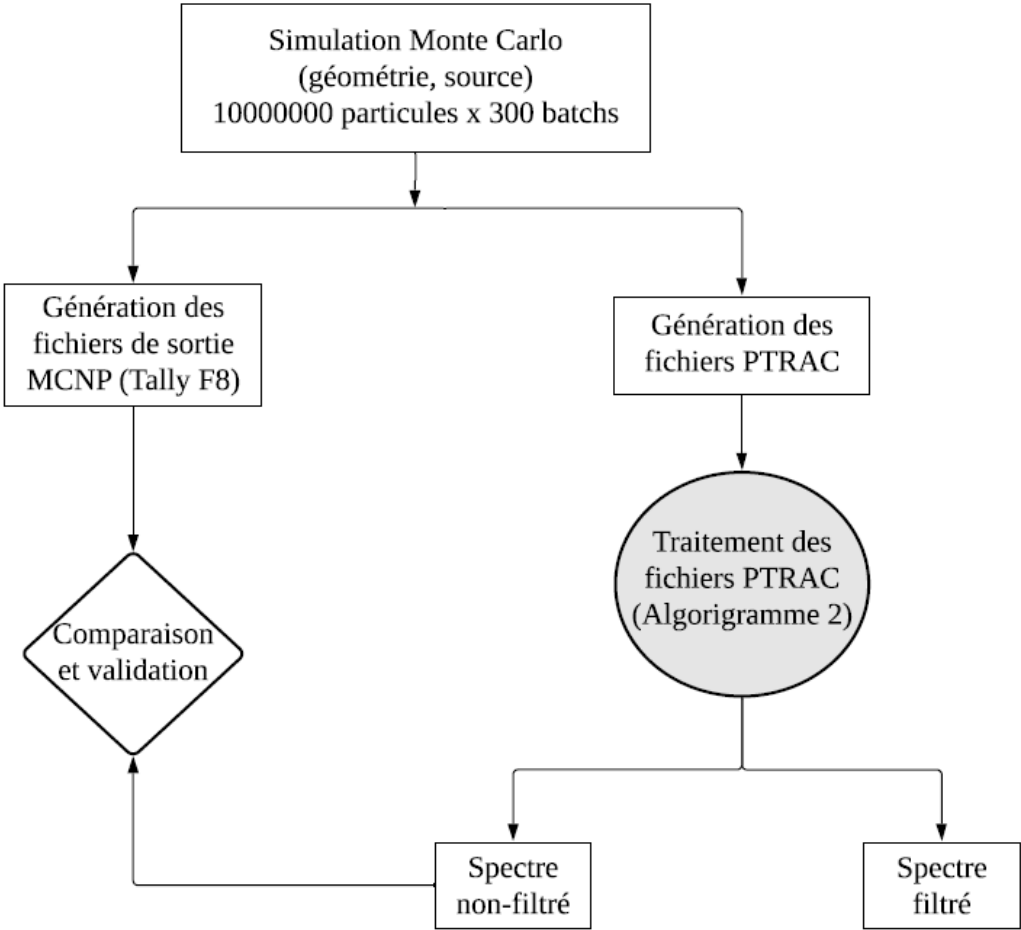


Figure 5-33 : Schéma de calcul pour la construction des spectres filtré et non-filtré.

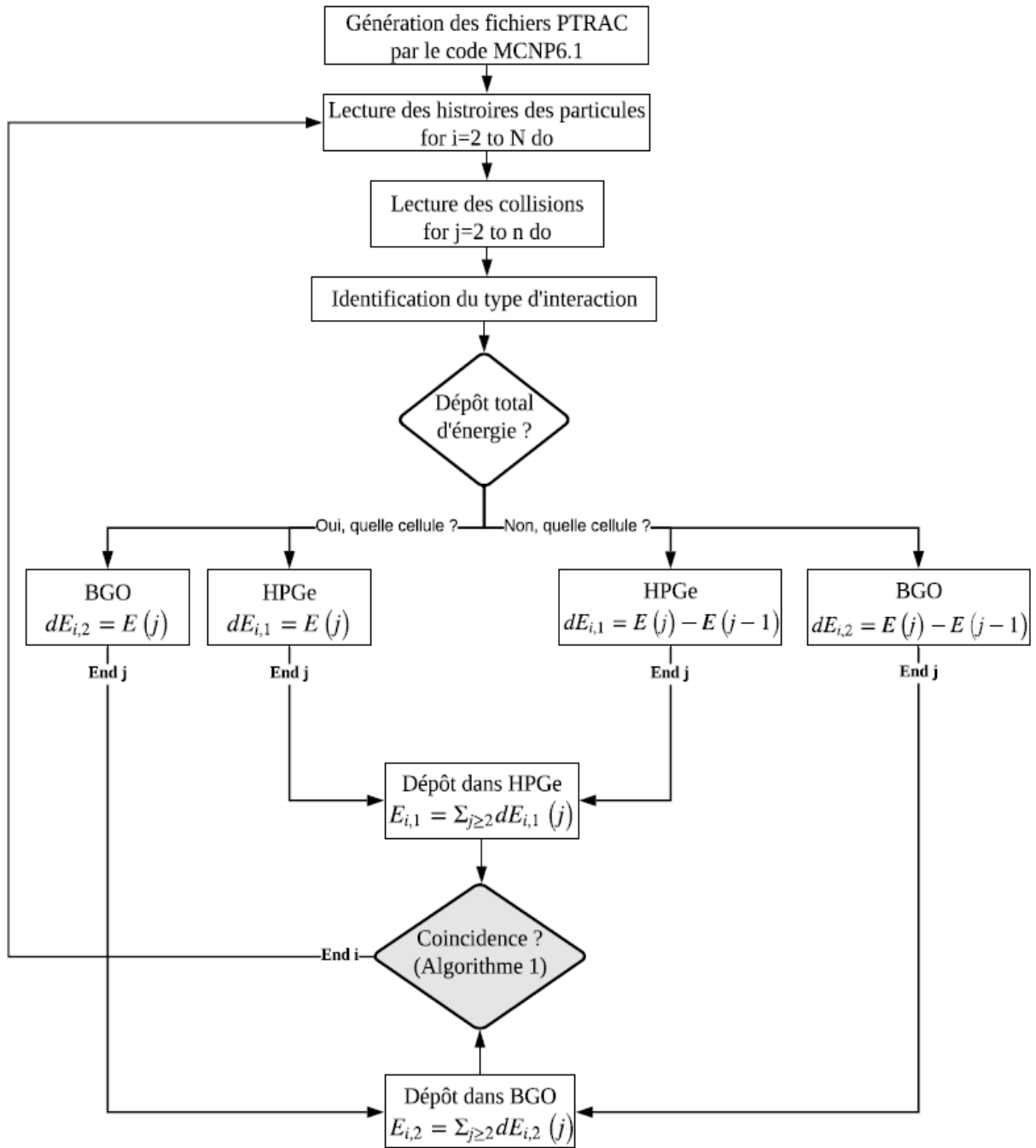


Figure 5-34 : Algorithme du post-traitement des fichiers PTRAC.

Les énergies déposées dans le spectromètre primaire "SP" et dans le détecteur de garde "DG" sont, à chaque étape, évaluées et classées afin de reconstruire le spectre  $\tau_{PTRAC,non-filtré}(E)$  attendu avant filtrage. Pour une histoire donnée "i", si on note  $E_{i,1}$  et  $E_{i,2}$  les énergies déposées dans le SP et le DG respectivement (cf. Equations de la figure 5-34), la fonction d’anti-coïncidence qui retourne la réponse filtrée  $E_{i,3}$  dans SP s’écrit (en pseudocode) :

Algorithme 1 : La fonction anti-coïncidence.

---

*Algorithme de la fonction anticoincidence*

---

```

Function [ $E_{i,3}$ ] = anticoincidence( $E_{i,1}$ ,  $E_{i,2}$ )
  if  $E_{i,2} > 0$ 
     $E_{i,3} = 0$ ;
  else
     $E_{i,3} = E_{i,1}$ ;
  end if
End Function

```

---

Notons que, lorsque la fonction de filtrage en anti-coïncidence n’est pas appliquée, le spectre dans le SP reconstruit à partir des fichiers PTRAC, noté  $\tau_{PTRAC,non-filtré}(E)$ , est censé être identique au spectre  $\tau_{MCNP}(E)$  obtenu avec le tally 8 de MCNP6.1. Ainsi, nous pouvons effectuer un premier niveau de validation « logicielle » de notre filtrage en anti-coïncidence en comparant  $\tau_{PTRAC,non-filtré}(E)$  et  $\tau_{MCNP}(E)$ . Notons que, pour réaliser le calcul, le programme doit mettre en mémoire RAM l’ensemble des données du fichier PTRAC pour le traiter. Or, comme la mémoire peut saturer (au-delà de 1000000 particules sources dans notre cas), le même calcul a été divisé en *batches* pour lesquels la graine du générateur de nombre aléatoire a été, à chaque nouveau *batch*, translatée (cf. Figure 5-33).

### 2.3. Pré-validation logicielle de la simulation du filtrage en anti-coïncidence

Afin de montrer la démarche suivie pour pré-valider l’algorithme de traitement des anti-coïncidences décrit dans la section 2.2.2, nous comparons pour un émetteur  $^{137}\text{Cs}$  :

- les spectres  $\tau_{PTRAC,non-filtré}(E)$  reconstruits à partir des fichiers PTRAC sans la mise en œuvre d’un filtrage en anti-coïncidence ;
- avec les spectres  $\tau_{MCNP}(E)$  du tally F8 de MCNP6.1.

Les deux réponses spectrales au terme source d’émission gamma du  $^{137}\text{Cs}$  sont superposées sur la figure 5-35, permettant d’observer leur accord parfait.

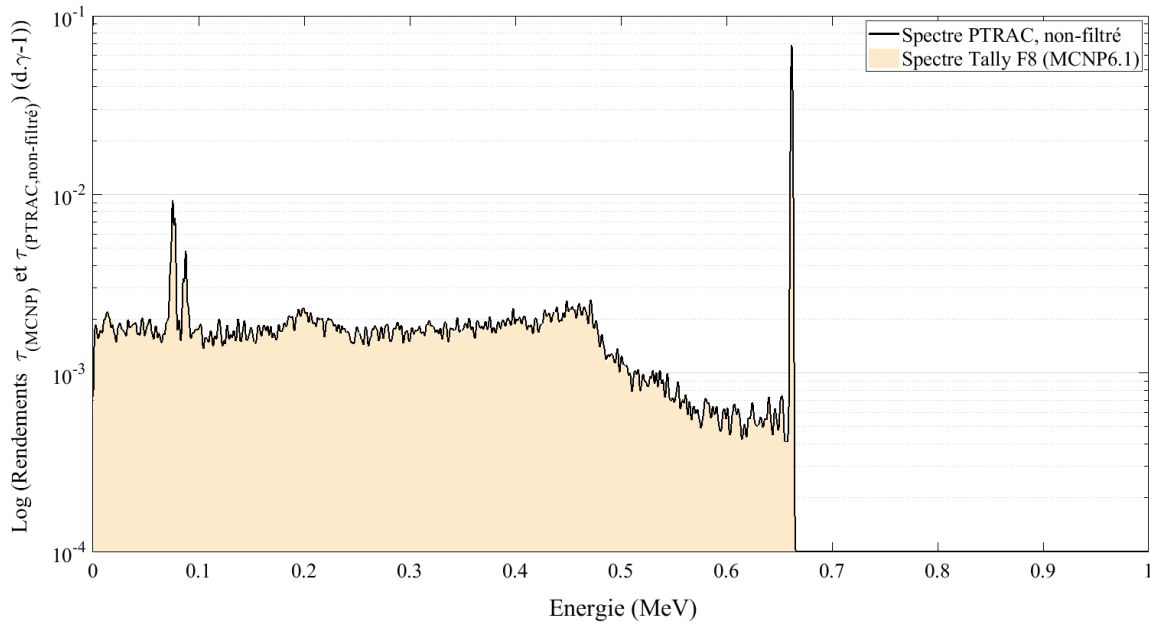


Figure 5-35 : Rendements spectraux simulés  $\tau_{MCNP}(E)$  et  $\tau_{PTRAC,non-filtré}(E)$  (terme source gamma du  $^{137}\text{Cs}$ ).

La comparaison quantitative des deux spectres est effectuée par le calcul de l'écart relatif  $\varepsilon_{\%}(E)$  entre les deux réponses  $T_{MCNP}(E)$  et  $T_{PTRAC,non-filtré}(E)$ , autour d'une énergie d'intérêt pour le radio-isotope considéré. Les intervalles de sommation sont définis par l'équation (36) lorsque  $E$  est le centroïde d'un pic d'absorption totale et correspondent, dans tous les autres cas, à une plage spectrale  $[E - \Delta; E + \Delta]$  pertinente :

$$\varepsilon_{\%}(E) = 100\% \cdot \frac{T_{PTRAC,non-filtré}(E) - T_{MCNP}(E)}{T_{MCNP}(E)} \quad (35)$$

$$\varepsilon_{\%}(E) = 100\% \cdot \frac{\sum_{E_i \in [E-\Delta; E+\Delta]} \tau_{PTRAC,non-filtré}(E_i) - \sum_{E_i \in [E-\Delta; E+\Delta]} \tau_{MCNP}(E_i)}{\sum_{E_i \in [E-\Delta; E+\Delta]} \tau_{MCNP}(E_i)} \quad (36)$$

Les valeurs de  $\varepsilon_{\%}(E)$  qui sont reportées dans le tableau 5-6 correspondent à quatre régions caractéristiques pour le  $^{137}\text{Cs}$  : le PAT à 661,7 keV, le front Compton à 477,4 keV, le pic de rétrodiffusion à 184,3 keV et le milieu du plateau Compton autour de 331 keV.

Tableau 5-6 : Ecarts relatifs entre le tally MCNP6.1 et le post-traitement des fichiers PTRAC pour le  $^{137}\text{Cs}$ .

Région spectrale	Pic de rétrodiffusion (184 ± 20 keV)	Plateau Compton (331 ± 20 keV)	Front Compton (477 ± 20 keV)	PAT (661,7 ± 3 keV)
$\varepsilon_{\%}$	-1,6 ± 0,1%	2,6 ± 0,1%	2,5 ± 0,1%	3,7 ± 0,2%

Les résultats montrent que l’écart relatif  $\varepsilon_{\%}(E)$  est toujours inférieur à 5 % en valeur absolue, ce qui nous fournit une première validation de la justesse de l’algorithme détaillé dans la Section 2.2. Nous allons, par conséquent, nous appuyer sur ce simulateur pour calculer la réponse spectrale attendue  $\tau_{PTRAC,filtré}(E)$  lorsque la suppression Compton en anti-coïncidence est mise en œuvre.

### 2.4. FSC estimés dans la configuration de base du SSC

Après avoir mis au point et validé un schéma de calcul pour le traitement des anti-coïncidences (figures 5-33 et 5-34), nous étudions dans cette section les réponses spectrales attendues dans le spectromètre primaire, d’abord sans blindage actif, puis avec l’ajout du détecteur de garde, avec et sans application du filtrage en anti-coïncidence. Trois configurations matérielles ont ainsi été simulées, indexées  $\{s_1, s_2, s_3\}$  comme suit :

- $s_1$ : HPGe seul dans le château en Pb,
- $s_2$ : HPGe et BGO intégrés dans le château en Pb sans filtrage en anti-coïncidence,
- $s_3$ : HPGe et BGO intégrés dans le château en Pb avec filtrage en anti-coïncidence.

La comparaison des configurations  $s_1$  et  $s_2$  nous permet d’évaluer l’impact de la protection passive du détecteur de garde sur la réponse du spectromètre principal, étant donné que le BGO est un milieu dense de numéro atomique élevé. En comparant  $s_2$  et  $s_3$ , nous quantifions les performances du SSC vis-à-vis de la réduction Compton. Les trois configurations ci-dessus ont été modélisées en présence des termes sources gamma du  $^{137}\text{Cs}$  et du  $^{60}\text{Co}$ . Par ailleurs, quatre positions spatiales  $\{P1, P2, P3, P4\}$  de la source ponctuelle ont été étudiées, suivant la représentation de la figure 5-36. La suppression Compton est illustrée sur la figure 5-37 avec le terme source gamma du  $^{137}\text{Cs}$ , sur la totalité de la plage comprise entre le premier canal et le pic d’absorption totale à 661,7 keV. Nous relevons, en particulier, la réduction des raies X à basse énergie. Ces dernières correspondent aux PAT des raies de fluorescence à 74,8 keV et 85,7 keV du Pb du blindage passif, potentiellement superposées aux PAT des raies de fluorescence 77,1 keV et 87,3 keV du Bi présent dans le blindage actif [114].

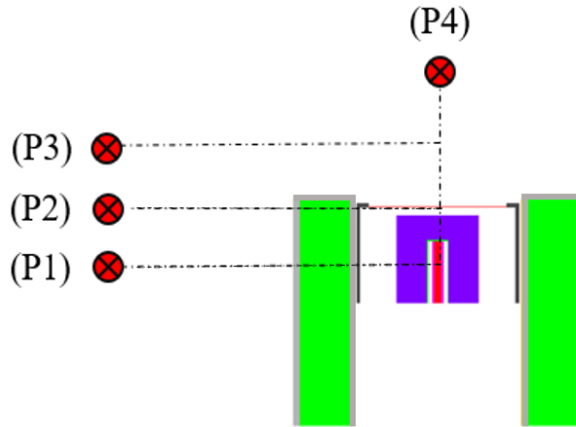


Figure 5-36 : Positions d’irradiation simulées

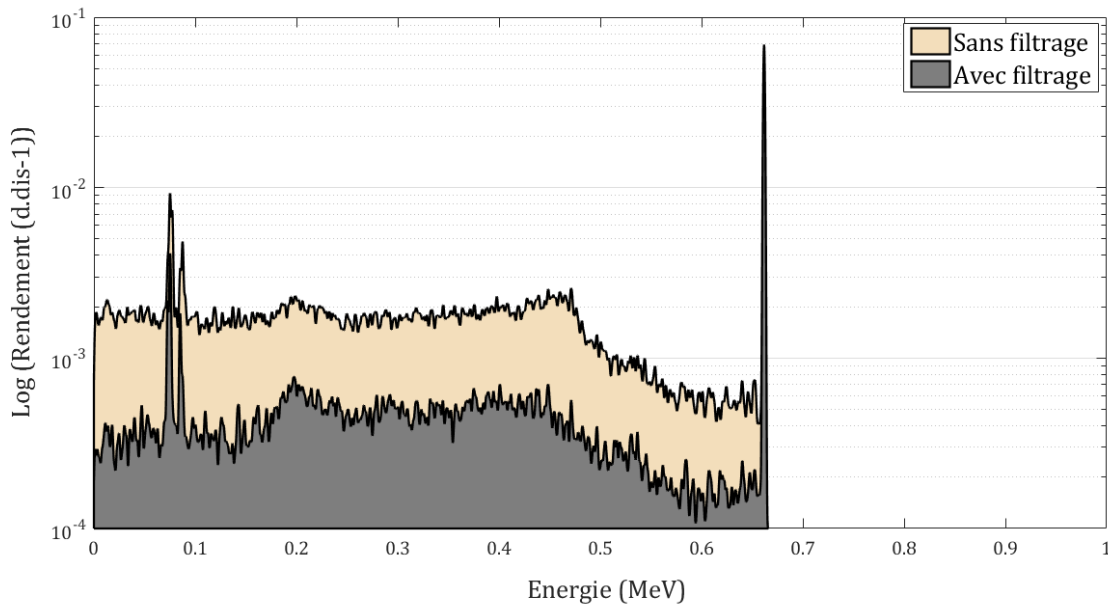


Figure 5-37: Spectres non-filtré ( $s_2$ ) et filtré ( $s_3$ ) avec HPGe/BGO.

Les performances attendues dans la configuration initiale du SSC, modélisée ici, sont évaluées au moyen du facteur de mérite  $FSC$  tel que défini par l'équation (32). En effet, par construction, la configuration  $s_2$  donne accès à une estimée numérique de  $\left(\frac{P}{C}\right)_{non-filtré}$ , tandis que  $s_3$  nous permet de calculer une valeur attendue de  $\left(\frac{P}{C}\right)_{filtré}$ . Les résultats de cette étude par simulation sont résumés dans le tableau 5-7 en fonction du spectre d'émission et de la position de la source.



Tableau 5-7 : Facteurs *FSC* obtenus par le modèle Monte Carlo pour différentes énergies et positions.

Radio-isotope	Energie (keV)	FSC (P1)	FSC (P2)	FSC (P3)	FSC (P4)
<sup>137</sup> Cs	661,7	3,8	3,7	2,8	2,8
<sup>60</sup> Co	1173,2	3,6	3,5	3,0	2,6
<sup>60</sup> Co	1332,5	3,6	3,6	3,1	2,6

Pour des termes sources de moyenne ou haute énergie, tels que ceux du <sup>137</sup>Cs et du <sup>60</sup>Co, les valeurs de *FSC* dans les quatre positions sont comprises entre 2,6 et 3,8, avec une moyenne de 3,2 et une incertitude à un écart-type de 0,4.

Nous observons, par ailleurs, que le *FSC* décroît d’environ 26 % en passant de P1 à P4, ce qui s’explique simplement par le fait que les rayonnements gamma ont un parcours plus faible dans le détecteur de garde en position P4 qu’en P1 et, de ce fait, subissent moins de diffusions Compton susceptibles d’être filtrées par anti-coïncidence.

Les résultats numériques présentés dans le tableau 5-7 sont représentatifs du fonctionnement d’un filtrage « idéal » des interactions gamma, conduisant à 100 % de réjection des photons incidents ayant interagi à la fois dans le détecteur de garde et dans le spectromètre et à 100 % de conservation des photons totalement absorbés dans le spectromètre. Les performances concrètes d’un SSC dépendent de l’architecture analogique et numérique de traitement des impulsions, du temps mort et des bornes de la fenêtre temporelle dédiée au filtrage des événements coïncidents [98]. L’étape suivante de notre étude consiste donc à évaluer, à travers une série de mesures, l’écart expérimental du modèle numérique de SSC, décrit dans cette section.

### 3. Validation expérimentale du modèle de SSC HPGe/BGO

#### 3.1. Montage expérimental

Les briques matérielles constitutives du banc d’essai ont été décrites dans le paragraphe III.1. Le montage, tel qu’il est reproduit sur la figure 5-37, repose sur une diode germanium de haute pureté à électrodes inversées REGe1020, laquelle possède une efficacité relative de 10 % et une *LTHM* de 1 keV et 2 keV respectivement à 122 keV et 1332 keV. Le détecteur de garde annulaire en BGO a été obtenu auprès de la société SCIONIX HOLLAND [115]: la protection en aluminium enveloppe quatre tubes photomultiplicateurs (abrégé PMT, pour *photomultiplier tube* en anglais) d’un diamètre de 25,4 mm, commercialisés par la société HAMAMATSU PHOTONIS avec la référence R1924A. Les PMT sont polarisés en haute tension au moyen d’une alimentation programmable à quatre canaux CAEN N147. Le détecteur BGO a une résolution relative de 16,3 % à 662 keV. Le SSC HPGe/BGO est monté à l’intérieur d’un château en Pb qui assure un blindage sur 360° vis-à-vis des rayonnements externes.

L'acquisition et le traitement des impulsions sur les deux voies du semi-conducteur Ge et du scintillateur BGO sont réalisés avec un analyseur multicanaux de modèle CAEN "Hexagon" [116]. Le convertisseur analogique numérique échantillonne les impulsions à la fréquence de 100 MHz. Le traitement du signal comprend un filtre trapézoïdal et un étage de différenciation. Les impulsions sont extraites avec un trigger de type fraction constante et les amplitudes maximales sont enregistrées dans un histogramme sur 16 bits.

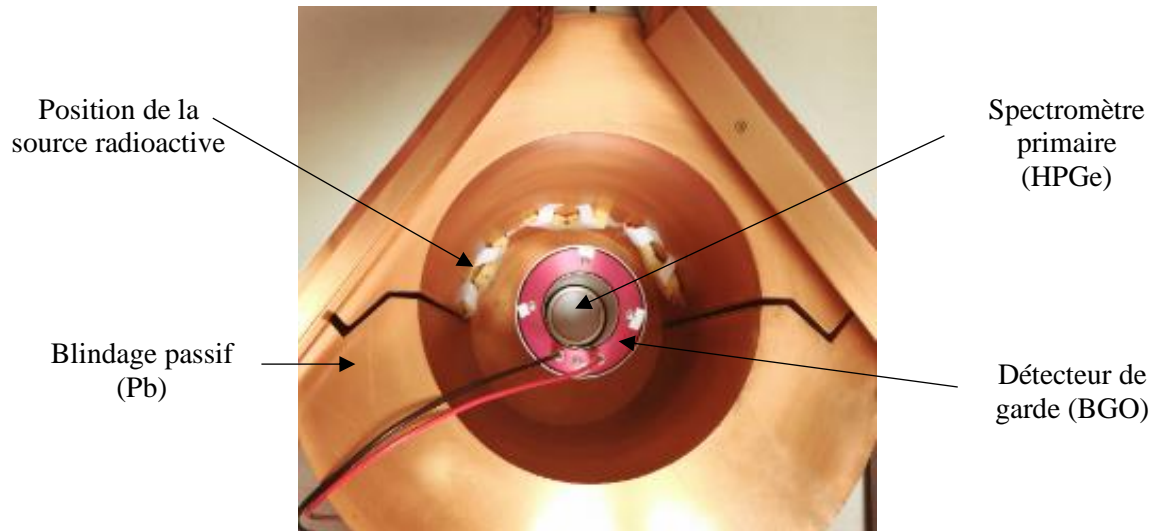


Figure 5-38 : Montage expérimental du SSC HPGe/BGO.

La largeur temporelle du filtre en anti-coïncidence sur les voies Ge et BGO est réglée au moyen du logiciel CAEN MC<sup>2</sup> Analyzer [116]. Comme indiqué à la fin de la Section 3.3.4, la définition d'une fenêtre de réjection des coïncidences a une influence sur les performances spectrométriques de l'ensemble du SSC. En effet, lorsque la fenêtre s'élargit, le risque de rejeter des événements physiquement non-corrélés mais fortuitement coïncidents à l'intérieur de l'intervalle, s'accroît : il en résulte une dégradation de la statistique de comptage sous le PAT. A l'inverse, lorsque la fenêtre est réduite, un nombre plus faible d'événements physiquement corrélés se trouve filtré, au détriment de la réduction de la ligne de base Compton. En conséquence, la largeur de la fenêtre d'anti-coïncidence est fixée sur la base d'un compromis, dont le niveau optimal a été déterminé à 1,5  $\mu$ s.

### 3.2. Validation du modèle numérique du SSC sans filtrage en anti-coïncidence

Les trois configurations  $\{s_1, s_2, s_3\}$  détaillées dans le paragraphe III.4, sont testés expérimentalement dans les quatre positions  $\{P1, P2, P3, P4\}$ . Pour chaque configuration et position de mesure, deux sources étalons sont utilisées :  $^{137}\text{Cs}$  (activité  $A = 500$  kBq),  $^{60}\text{Co}$  ( $A = 110$  kBq). La réponse expérimentale intégrée sous le pic d’absorption totale à l’énergie  $E$  est notée  $R_{non-filtré}(E)$  et exprimée en coups par seconde ( $s^{-1}$ ). Afin de comparer des grandeurs homogènes, les rendements simulés  $T_{PTRAC,non-filtré}(E)$ , en dépôt d’énergie par gamma par seconde ( $\gamma^{-1}$ ), doivent être convertis en une réponse simulée, notée  $Y_{non-filtré}(E)$  et exprimée en  $s^{-1}$  via l’équation :

$$Y_{non-filtré}(E) = T_{PTRAC,non-filtré}(E) \cdot I_{\gamma} \cdot A \quad (37)$$

Où  $I_{\gamma}$  est l’intensité d’émission de la raie gamma à l’origine du PAT. Les figures 5-39 et 5-40 présentent les réponses expérimentales  $R_{non-filtré}(E)$  (en vert) et simulées  $Y_{non-filtré}(E)$  (en rouge) respectivement associées aux configurations  $s_1$  and  $s_2$ .

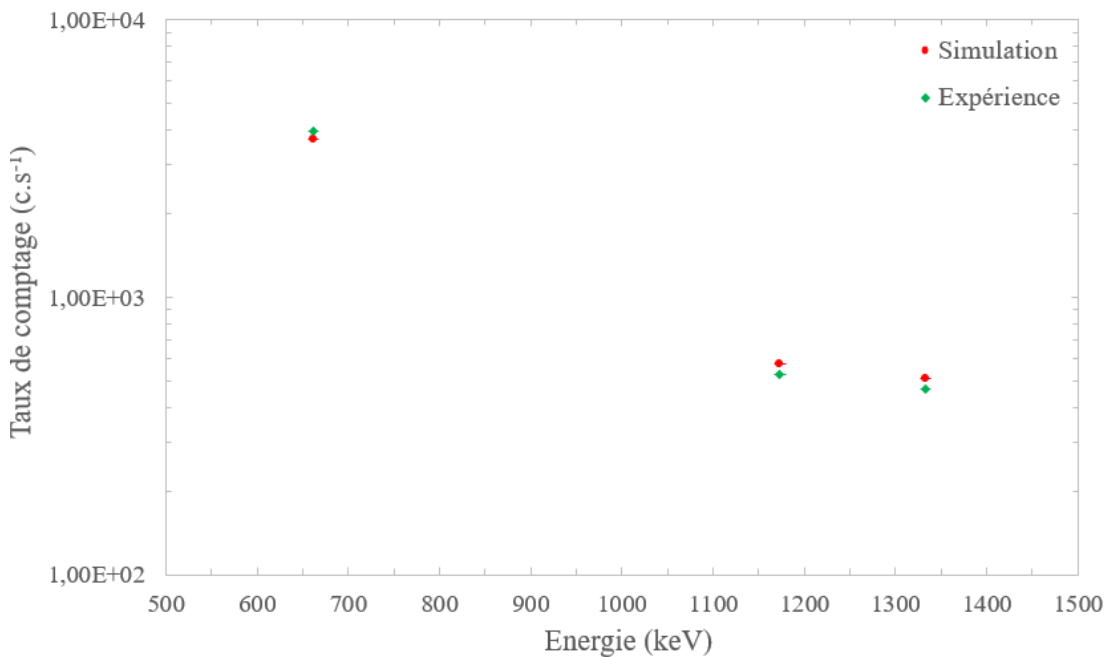


Figure 5-39 : Réponses simulées et mesurées dans la configuration  $s_1$  en position P1.

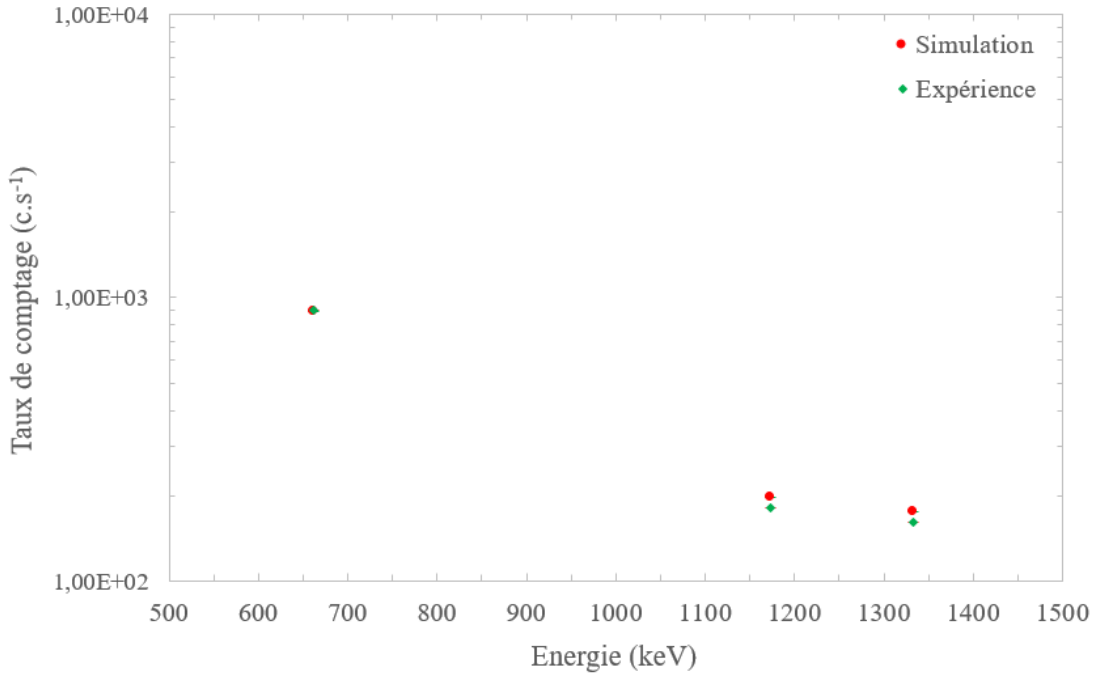


Figure 5-40 : Réponses simulées et mesurées dans la configuration  $s_2$  en position P1.

Les figures 5-39 et 5-40 montrent que les réponses  $R_{non-filtré}(E)$  et  $Y_{non-filtré}(E)$  suivent des tendances similaires pour les énergies d’émission gamma d’intérêt. Nous remarquons que la présence seule du BGO en tant que blindage passif, c’est-à-dire en l’absence de filtrage en anti-coïncidence ( $s_2$ ), induit une perte de taux de comptage par atténuation : à titre d’exemple, le taux de comptage sous le PAT à 661,7 keV décroît d’un facteur 4 entre les configuration  $s_1$  et  $s_2$  en présence du BGO en position P1.

Si nous notons  $(E, P)$  un couple énergie-position donné, il est possible d’estimer un coefficient  $\omega(E, P)$  défini comme le rapport entre l’expérience et le modèle numérique tel que :

$$\omega(E, P) = \frac{R_{non-filtré}(E, P)}{Y_{non-filtré}(E, P)} \quad (38)$$

Pour chacune des énergies, une moyenne pondérée par la statistique de comptage  $\omega(E)$  est calculée sur l’ensemble des quatre positions [94]. Les valeurs de  $\omega(E, P)$  obtenues dans les différentes configurations sont reportées dans le tableau 5-8.

Tableau 5-8 : Le rapport  $\omega(E, P)$  en fonction de l’énergie (configurations  $s_1$  et  $s_2$ ).

<b>Energie</b> <b>Configuration</b>	<b>661,7 keV</b>	<b>1173,2 keV</b>	<b>1332,5 keV</b>
<b><math>\omega (s_1)</math></b>	1,03 ± 0,03	0,90 ± 0,06	0,99 ± 0,05
<b><math>\omega (s_2)</math></b>	0,86 ± 0,10	1,06 ± 0,24	1,04 ± 0,22

Le rapport  $\omega$  a, sur l’ensemble des résultats du Tableau 5-8 :

- une valeur moyenne de 0,98,
- et une dispersion à un écart-type de 0,09.

Compte tenu de la précision requise par la problématique de la thèse, un rapport entre l’expérience et le modèle numérique aussi proche de 1 nous permet :

1. de considérer comme suffisamment valide le modèle numérique du SSC sans filtrage en anti-coïncidence (*cf.* Section 2.2),
2. d’utiliser les valeurs de  $Y_{non-filtré}(E)$  sans correction expérimentale comme estimées de la réponse attendue sans filtrage dans le HPGe (*cf.* Section 4 et Chapitre 6).

### 3.3. Validation du modèle numérique du SSC avec filtrage en anti-coïncidence

Dans la seconde validation, nous exploitons les configurations de simulation  $s_2$  et  $s_3$  afin d’évaluer, respectivement, les réponses  $Y_{non-filtré}(E, P)$  et  $Y_{filtré}(E, P)$ . Cette dernière est calculée à partir de la réponse  $\tau_{PTRAC,filtré}(E, P)$  par une procédure identique à celle des équations (34) et (37). Les réponses expérimentales correspondantes  $R_{non-filtré}(E, P)$  et  $R_{filtré}(E, P)$  sont obtenues au moyen de la chaîne électronique décrite dans le paragraphe 4.4.1. Au titre de facteur de mérite pour qualifier le modèle, nous utilisons directement les facteurs de suppression Compton obtenus par l’expérience et par la simulation, respectivement notés  $FSC_{exp}$  et  $FSC_{sim}$ . Les valeurs de  $FSC_{exp}$  (en vert) et  $FSC_{sim}$  (en rouge) sont tracées pour la position P1 en fonction de l’énergie sur la figure 5-41, et à l’énergie de 1,17 MeV ( $^{60}\text{Co}$ ) en fonction de la position sur la figure 5-42.

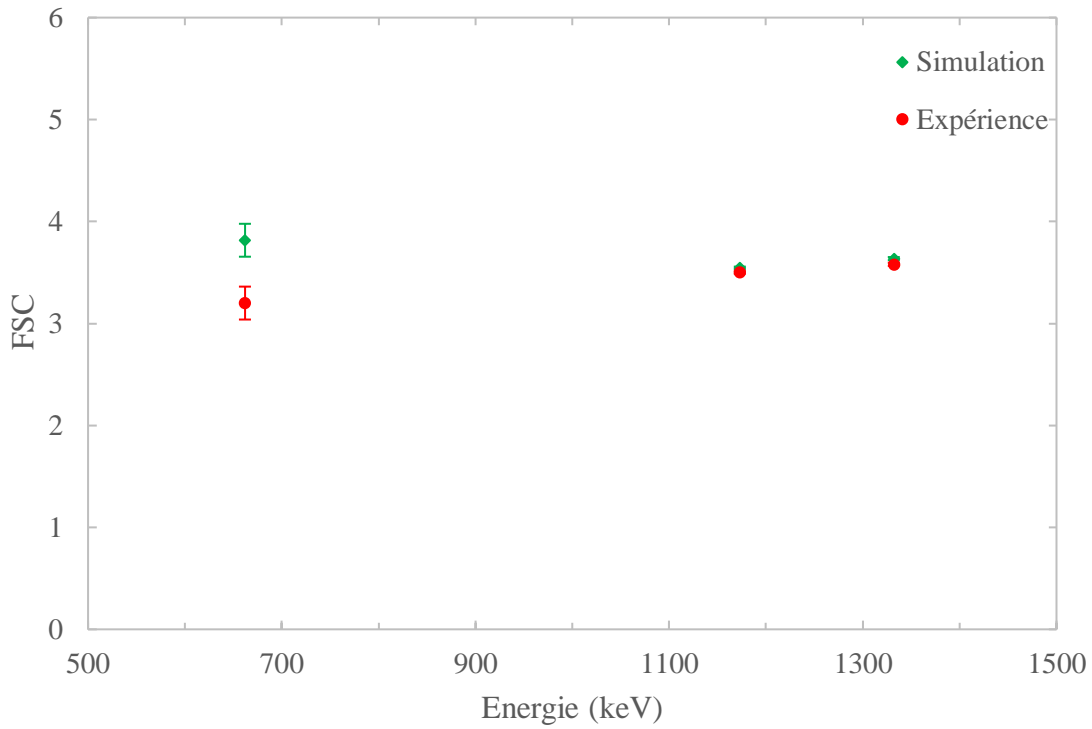


Figure 5-41 : Facteurs  $FSC$  expérimentaux et simulés à la position P1 en fonction de l'énergie.

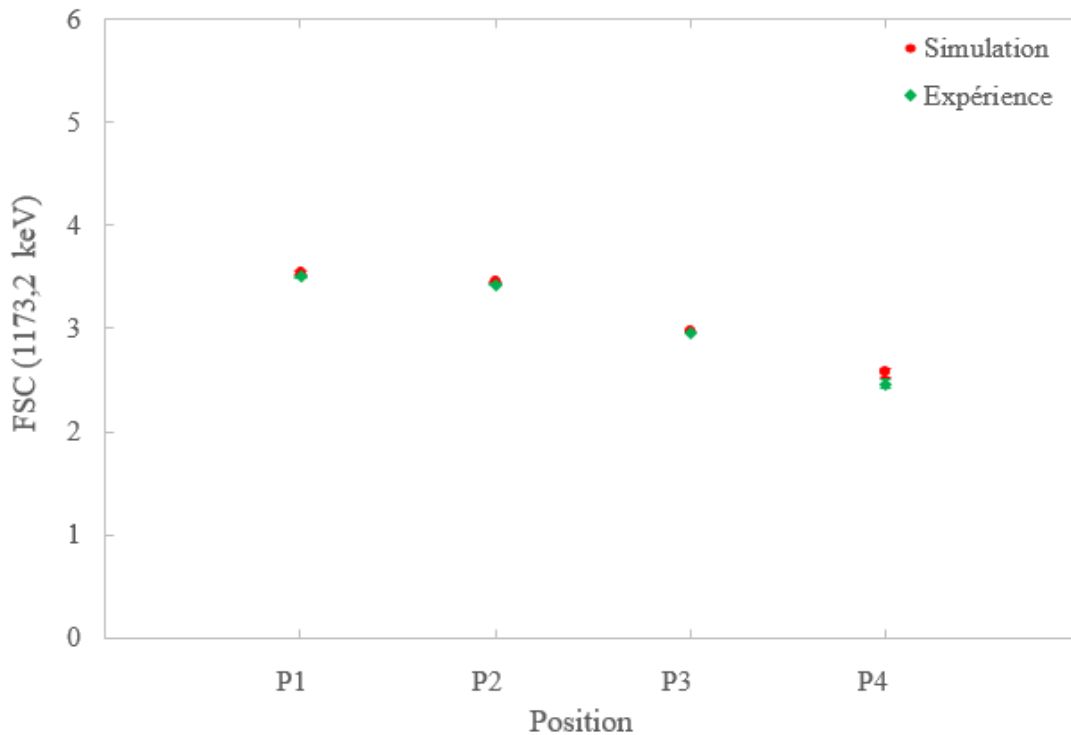


Figure 5-42 : Facteurs  $FSC$  expérimentaux et simulés à l'énergie 1173,2 keV en fonction de la position.

La comparaison de  $FSC_{sim}$  et  $FSC_{exp}$  indique que les performances intrinsèques à la suppression Compton sont légèrement moindres dans les résultats expérimentaux que dans les

estimées numériques. Ce constat était attendu sur la base des arguments avancés à la fin du paragraphe 5.2.2.4. L'erreur relative entre les valeurs expérimentales et simulées de  $FSC_{p/c}$  est inférieure à 5 % en valeur absolue pour les émissions du  $^{60}\text{Co}$  et à 16 % pour celle du  $^{137}\text{Cs}$ . Nous pouvons en conclure que le modèle du système à suppression Compton, présenté dans la section 5.2, rend compte assez fidèlement des performances spectrométriques du système. Dans la mesure où nous nous intéressons à l'ordre de grandeur des limites de détection atteignable avec un SSC HPGe/BGO, nous allons fonder l'étude d'optimisation système sur le facteur de mérite  $FSC_{sim}$  sans appliquer de facteurs de correction expérimentale.

### 4. Etude d'optimisation du SSC HPGe/BGO

Après avoir défini la nature du détecteur de garde, la géométrie est le facteur-clé pour la maximisation des performances spectrométriques d'un SSC. Comme nous le verrons plus en détail au chapitre 6, le SSC que nous sommes en train de concevoir sera utilisé pour détecter un signal basé sur les émissions gamma des produits de fission, en présence d'un bruit de fond contraignant lié aux produits d'activation. L'objectif de l'étude présentée dans cette section consiste à avoir une estimation plus précise des paramètres de conception du détecteur de garde et de sa disposition pour notre problématique. Ainsi, le facteur de suppression Compton FSC sera maximisé tout en minimisant la dégradation des pics d'absorption totale d'intérêt. Les paramètres de ce dimensionnement seront basés sur les raies à 661,7 keV, 1173,2 keV et 1332,5 keV, lesquels sont représentatives du bruit lié aux produits d'activation après dégazage de sodium ( $^{41}\text{Ar}$  : 1294 keV,  $^{23}\text{Ne}$  : 440 keV).

#### 4.1. Epaisseur du cylindre creux de BGO

Le premier paramètre que nous avons étudié est l'épaisseur du rayon de l'anneau BGO entourant la diode HPGe. Nous avons estimé le facteur de suppression Compton pour la raie gamma du  $^{137}\text{Cs}$  et les deux raies du  $^{60}\text{Co}$ , avec une épaisseur radiale de BGO comprise entre 10 et 70 mm. Les résultats de l'étude de simulation sont présentés sur la figure 5-43 pour une position de source devant le détecteur, soit la position P4 de la figure 5-36.

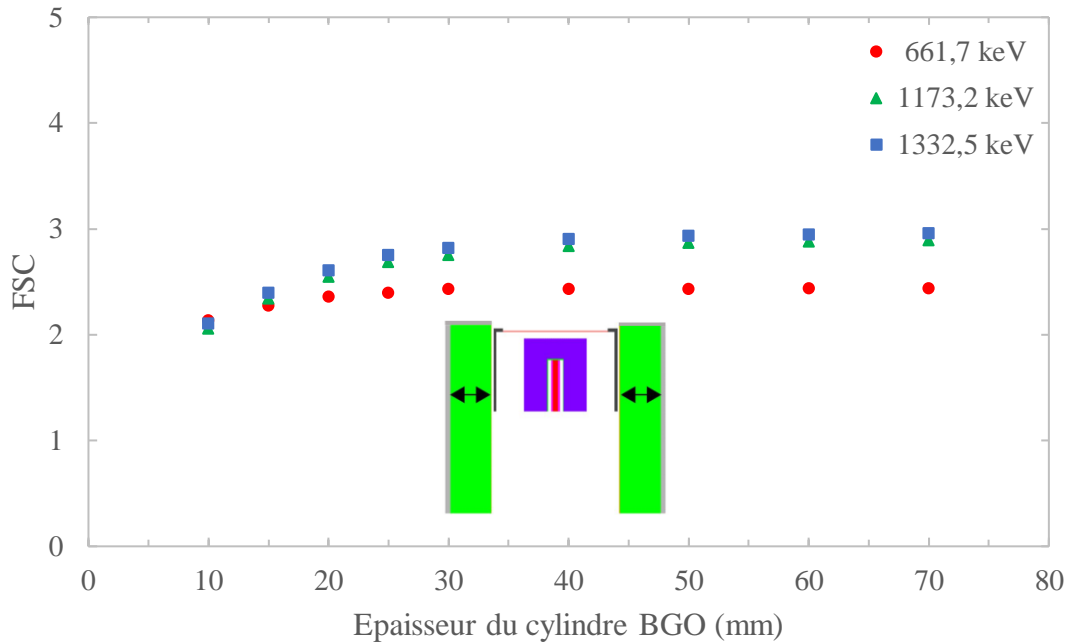


Figure 5-43 : Evolution de  $FSC$  en fonction de l'épaisseur du cylindre creux de BGO ( $^{137}\text{Cs}$  et  $^{60}\text{Co}$ ) en position P4.

Tous les facteurs de suppression Compton  $FSC$  augmentent en fonction de l'épaisseur du BGO. De plus, les distributions montrent une tendance convergente, avec un changement de pente entre 25 et 30 mm pour le  $^{60}\text{Co}$ , et entre 15 et 20 mm pour le  $^{137}\text{Cs}$ . Sachant que le taux de comptage du détecteur véto évolue comme le carré de l'épaisseur et que le taux de coïncidences fortuites évolue de la même manière, il convient de limiter l'épaisseur au juste nécessaire.

Compte tenu de cela, si l'on considère que l'épaisseur de 70 mm de BGO est représentative du  $FSC$  à la convergence, la valeur du facteur de suppression de Compton à 30 mm représente environ 95 % de cette valeur de convergence pour les deux raies du  $^{60}\text{Co}$ , et 99,5 % pour la raie du  $^{137}\text{Cs}$ . Nous pouvons donc retenir une épaisseur BGO de 30 mm comme valeur optimale, permettant d'assurer une bonne convergence des facteurs de suppression de Compton tout en limitant le taux de coïncidences fortuites.

#### 4.2. Épaisseur de la fenêtre d'entrée de BGO

Le spectromètre primaire HPGe, dans les configurations des sections 5.2 et 5.3, n'est pas surmonté par une fenêtre d'entrée de BGO. Nous modélisons ici une couverture supplémentaire de blindage actif au-dessus de la diode, ainsi que représenté sur la figure 5-44. Nous faisons alors varier l'épaisseur axiale du BGO entre 5 et 50 mm et estimons les valeurs du facteur  $FSC$  pour les émissions du  $^{137}\text{Cs}$  et du  $^{60}\text{Co}$  en position P4. Les résultats de cette simulation sont représentés sur la figure 5-44 en fonction de l'épaisseur de la fenêtre d'entrée de BGO.



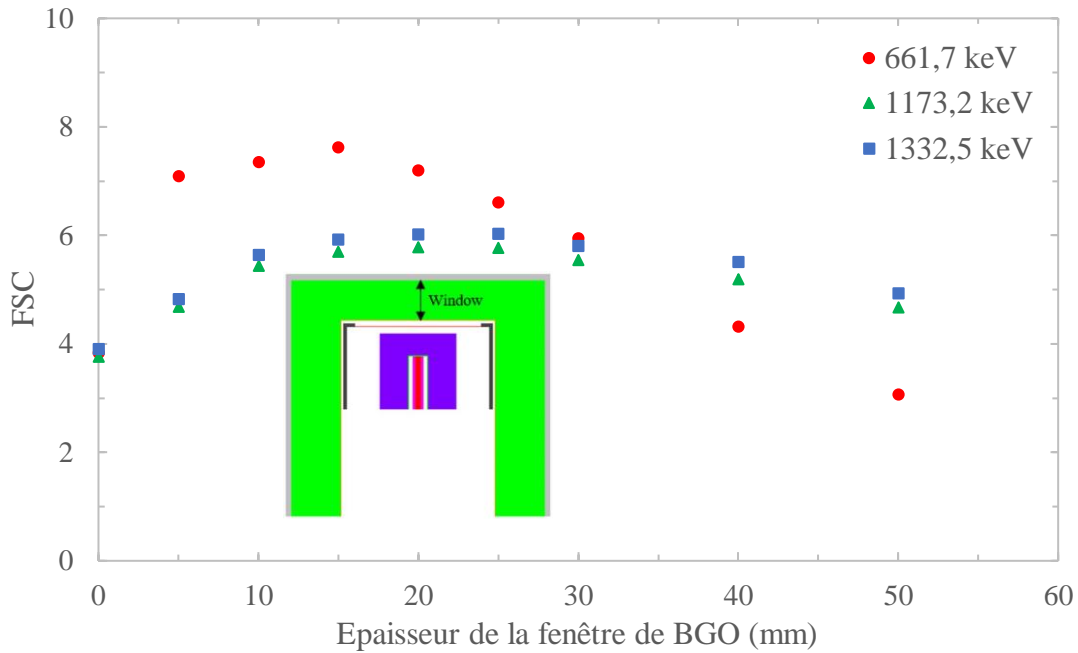


Figure 5-44 : Evolution de  $FSC$  en fonction de l’épaisseur de la fenêtre d’entrée de BGO ( $^{137}\text{Cs}$  et  $^{60}\text{Co}$ ) en position P4.

Les distributions aux deux raies de haute énergie du  $^{60}\text{Co}$  présentent un quasi-plateau entre 10 et 30 mm et une légère décroissance au-delà. En revanche, pour l’émission de plus basse énergie du  $^{137}\text{Cs}$ , le facteur  $FSC$  augmente de 50 % par rapport à la configuration du paragraphe précédent, jusqu’à un maximum atteint pour une fenêtre d’entrée de 15 mm de BGO. Nous relevons ensuite une décroissance quasi-linéaire de  $FSC$ , avec une pente d’environ 8,5 % par pas de 5 cm supplémentaire. Sur la base des deux observations ci-dessus, nous fixons l’épaisseur de la fenêtre de BGO à 15 mm dans la configuration optimisée.

### 4.3. Ouverture de collimation du BGO

La décroissance abrupte des  $FSC$ , illustrée avec l’émission du  $^{137}\text{Cs}$  (661,7 keV) au-delà de 15 mm de fenêtre d’entrée de BGO, met en évidence l’effet d’écran passif des rayonnements gamma incidents par le BGO (cf. Figure 5-44). Or, dans la problématique de la thèse, nous cherchons certes à maximiser la suppression Compton mais cela ne doit pas être au détriment des signaux gamma d’intérêt pour la mesure (ceux des produits des fission). Ce constat a motivé l’ajout d’un collimateur sur la fenêtre d’entrée, c’est-à-dire une ouverture circulaire au centre de la fenêtre de BGO. Nous faisons alors varier le rayon du collimateur, noté  $r$ , entre 0 et 20 mm, ainsi qu’illustré sur la figure 5-45.

Une fois le signal isotopique d’intérêt et le bruit de fond identifiés et quantifiés, le dimensionnement du collimateur d’un SSC repose sur un compromis entre :

- la suppression du continuum Compton, alimenté par les raies gamma à haute et moyenne énergie,

- la maximisation du signal du PAT, notée  $P$ , particulièrement critique à basse énergie en raison de l'atténuation par le BGO.

Les évolutions des facteurs de mérite  $FSC$  et  $P$  en fonction du rayon du collimateur sont superposées sur la figure 5-45 ci-dessous pour les raies d'émission du  $^{137}\text{Cs}$  et du  $^{60}\text{Co}$ .

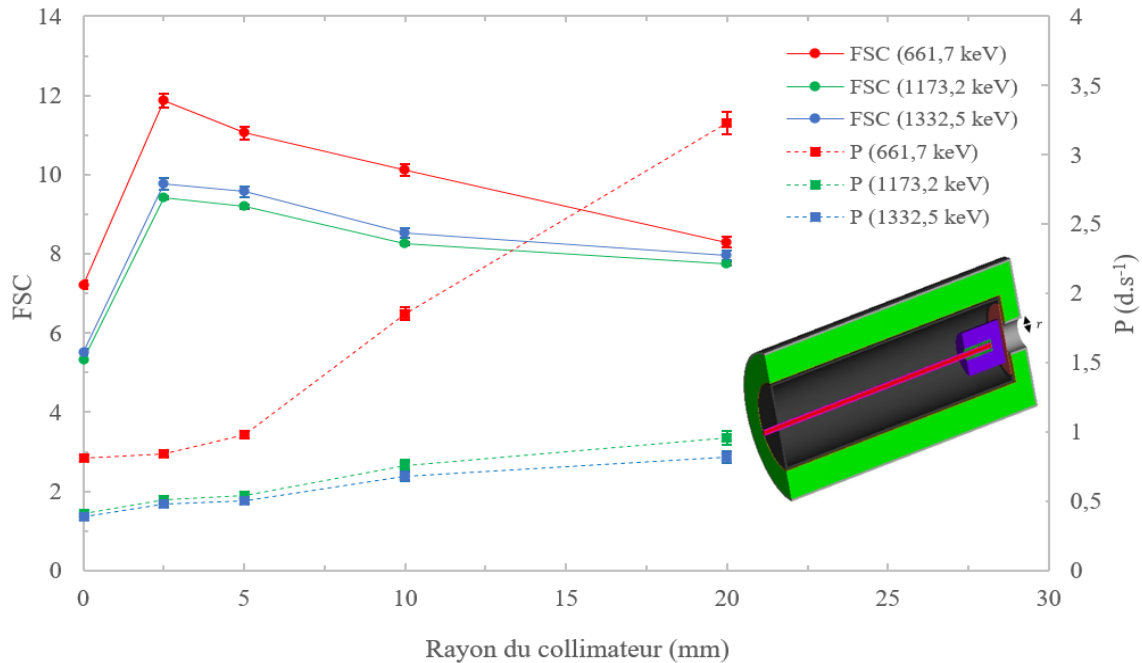


Figure 5-45 : Evolution de  $FSC$  et de  $P$  en fonction du rayon du collimateur de BGO ( $^{137}\text{Cs}$  et  $^{60}\text{Co}$ ) en position P4.

Nous relevons, en premier lieu, que les valeurs de  $FSC$  les plus élevées, comprises entre 9 ( $^{60}\text{Co}$ ) et 12 ( $^{137}\text{Cs}$ ), sont atteintes pour un rayon du collimateur de 2,5 mm.

Toutefois, le facteur  $P$  demeure quasi-constant lorsque le rayon du collimateur augmente de 0 à 2,5 mm. Au contraire,  $P$  est quatre fois plus élevé avec un rayon du collimateur de 20 mm qu'avec un rayon de 2,5 mm. Or, ce gain de réponse en absorption totale n'est acquis qu'au prix d'une dégradation limitée du facteur de réduction : de  $FSC \approx 12$  pour  $r = 2,5$  mm à  $FSC \approx 8$  pour  $r = 20$  mm.

Un collimateur de rayon 20 mm apparaît ainsi comme un compromis acceptable à moyenne et haute énergie vis-à-vis du rapport signal d'absorption totale sur bruit de diffusion Compton. C'est donc cette valeur que nous retenons pour le SSC HPGe/BGO optimisé, dont les performances attendues sont illustrées dans le paragraphe ci-après.

#### 4.4. Illustration des performances du filtrage SSC

Afin d'illustrer l'étude d'optimisation détaillée dans cette section, nous présentons les spectres simulés obtenus avec les quatre configurations suivantes :

- C<sub>1</sub>: cylindre BGO de 30 mm d'épaisseur, sans fenêtre d'entrée ni filtrage anti-coïncidence,
- C<sub>2</sub>: cylindre BGO de 30 mm d'épaisseur, sans fenêtre d'entrée, avec filtrage anti-coïncidence,
- C<sub>3</sub>: cylindre BGO de 30 mm d'épaisseur, fenêtre d'entrée de 15 mm, sans collimateur, avec filtrage anti-coïncidence.
- C<sub>4</sub>: cylindre BGO de 30 mm d'épaisseur, fenêtre d'entrée de 15 mm, collimateur de 40 mm(Ø), avec filtrage anti-coïncidence.

Les spectres obtenus sont reproduits sur la figure 5-46 pour une source simulée de <sup>137</sup>Cs à la position P4 (10 cm de la fenêtre du spectromètre principal).

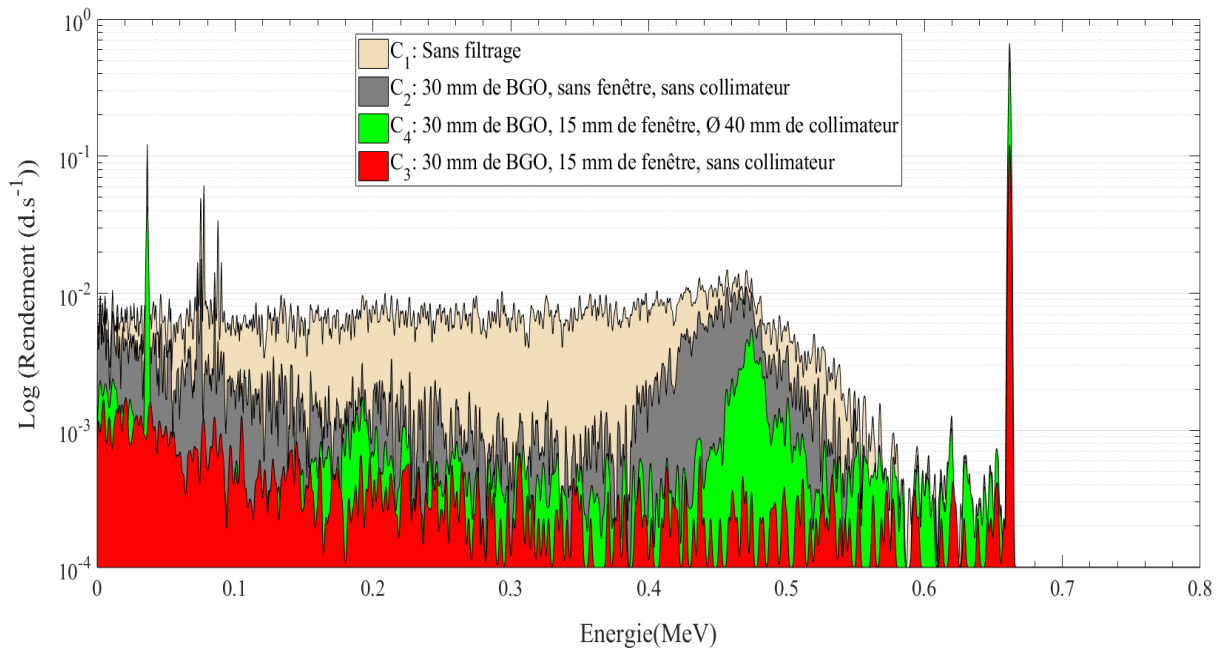


Figure 5-46 : Superposition des spectres obtenus dans les quatre configurations pour l'émetteur <sup>137</sup>Cs.

Dans la configuration C<sub>3</sub> (spectre rouge), nous vérifions que l'ajout d'une fenêtre de 15 mm sans collimateur réduit considérablement le fond de diffusion Compton. Un tel effet est dû à une couverture de presque  $4\pi$  stéradians de l'angle solide du spectromètre HPGe par le détecteur de garde. Une conséquence notable de cette couverture est la suppression quasi-complète du front Compton, avec des dépôts d'électrons de haute énergie dans le scintillateur BGO et des photons résiduels qui diffusent vers la source. Nous soulignons également la suppression des rayons X des conversions internes, en raison de l'absence d'ouverture dans la configuration C<sub>3</sub>. Une telle conception finit par dégrader le signal d'intérêt à 661,7 keV, le réduisant d'environ un demi-ordre de grandeur.

En même temps, nous observons qu'en ajoutant une ouverture de collimation de 40 mm(Ø) (configuration C<sub>4</sub>, spectre vert) en visée de la source, une réduction d'un ordre de grandeur du continuum Compton est toujours assurée par rapport à C<sub>1</sub> (courbe beige), tout en conservant plus de 75 % de la zone PAT d'intérêt en C<sub>1</sub>. La configuration géométrique optimisée dans cette

section et illustrée par le spectre vert ( $C_4$ ) sera un bon compromis entre la réduction Compton et la maximisation du signal d'intérêt.

### 5. Conclusion

Nous rappelons que l'objectif de ce chapitre était d'étudier l'apport d'un système à suppression Compton dans un dispositif de spectrométrie gamma basée sur une diode HPGe au titre de spectromètre primaire en vue d'une application pour la problématique de détection des ruptures de gaine. Parmi un ensemble de scintillateurs candidats, nous avons justifié le choix d'un cristal de BGO pour jouer le rôle du détecteur de garde. Un schéma de calcul dédié au traitement des fichiers de sortie MCNP6.1 pour le traitement des anti-coïncidences a été également développé et présenté.

Nous avons ensuite détaillé l'étude de conception d'un SSC HPGe/BGO à partir d'un post-traitement dédié à l'historique individuel des particules transportées par la méthode de Monte-Carlo (MCNP6.1/PTRAC). Le schéma numérique, qui simule le filtrage des événements de diffusions multiples dans les détecteurs primaire et de garde, a été validé expérimentalement au moyen d'une série de mesures, mettant en œuvre des sources de  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{60}\text{Co}$  dans des configurations variées. Tirant parti de cette validation, nous avons réalisé une étude d'optimisation du SSC sur la base de deux facteurs de mérite : le facteur de suppression Compton et le rendement sous le pic d'absorption totale. Les étapes de cette optimisation comprennent : le dimensionnement des diamètres interne et externe du détecteur de garde annulaire, celui de la fenêtre d'entrée de BGO et celui du diamètre de l'ouverture de collimation au centre de cette fenêtre.

Sur la base de cette configuration optimisée, nous procédons, dans le chapitre 6, à la conception du poste de spectrométrie gamma équipé d'un SSC pour la problématique spécifique de détection des ruptures de gaine.



# CHAPITRE VI

## SIMULATION DU POSTE DE MESURE FINAL ET ETUDE DE FAISABILITE

L'étude présentée dans ce chapitre a pour origine le souhait, exprimé dans les perspectives des travaux d'Emmanuel Rohée [76], de statuer sur la mesurabilité et, le cas échéant, l'opportunité d'améliorer la mesurabilité des signaux d'intérêt dans le contexte d'une détection précoce des ruptures de gaine. Ce travail précurseur a également consolidé la voie du dégazage des gaz contenus dans le sodium, déployée sur Phénix, afin de limiter l'inventaire en bruit aux seuls produits gazeux, à savoir le  $^{23}\text{Ne}$  et l' $^{41}\text{Ar}$ . Malgré la mise en place du dégazage, la présence de ces deux produits d'activation ont fortement contraint l'instrumentation historique par la présence de lignes à retard de 15 minutes nécessaires à la désactivation du  $^{23}\text{Ne}$  ; l'autre source de bruit, *i.e.* l' $^{41}\text{Ar}$ , présentant une période de 110 minutes, n'a pas pu être filtrée par ces lignes à retard.

Nous avons évalué dans les chapitres 3 et 4, *via* l'implémentation d'un modèle multi-physique simplifié, le terme source des produits de fission, soit des activités volumiques attendues  $A_{PF}$  dans les modes de prospection globale et ciblée. Le chapitre 5 a, quant à lui, été l'occasion de développer un schéma de calcul pour le traitement des anti-coïncidences et la reconstruction des spectres filtrés, de le valider expérimentalement avant de procéder à son optimisation.

Dans ce dernier chapitre, nous modéliserons la mesure de spectrométrie gamma RNR-Na équipée d'un système à suppression Compton au moyen d'une méthodologie de calcul incorporant la brique technologique développée et validée dans le chapitre 5. Celle-ci intégrera la modélisation de la plupart des phénomènes intrinsèques aux détecteurs et représentatifs d'une mesure réelle au sein d'un RNR-Na. Par reconstruction des signaux associés aux produits d'activation présents dans le volume de mesure, des activités minimales détectables des produits de fission seront évaluées. Celles-ci seront ensuite comparées aux activités attendues  $A_{PF}$ , précédemment calculées au chapitre 4. Enfin, au moyen d'un facteur de mérite, nous concluons sur l'apport d'un tel système à suppression Compton sur les activités minimales détectables, sur le temps de réponse de la spectrométrie gamma, et enfin, sur la mesurabilité des produits de fission gazeux d'intérêt.

La figure 6-47 représente le schéma général de la démarche suivie pour répondre à la problématique d'une spectrométrie gamma bas bruit pour le diagnostic des ruptures de gaine RNR-Na.

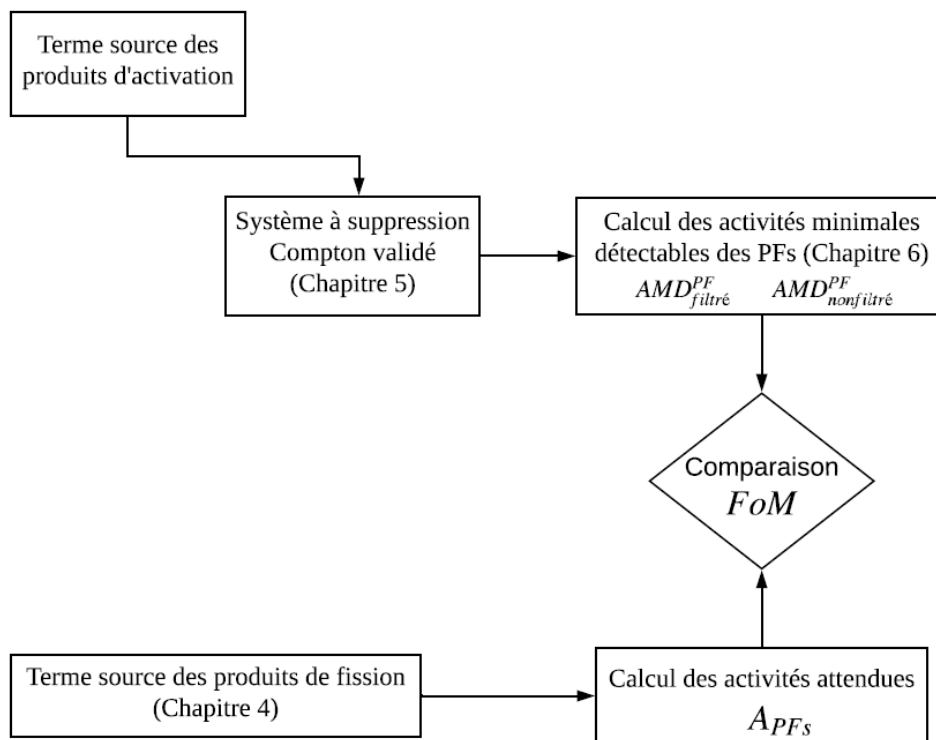


Figure 6-47 : Schéma général de la démarche suivie dans ces travaux pour répondre à la problématique du diagnostic des ruptures de gaine par spectrométrie gamma SSC.

## 1. Données de base, signal et bruit de la mesure

Le signal utile sera formé par le terme source des produits de fission dans le volume de mesure dont les activités  $A_{PF}$  ont été estimées par le modèle présenté dans le chapitre 4, et dont les valeurs sont indexées dans le tableau 4-3 pour différents temps de transit et de mesure. Le bruit, quant à lui, est conditionné par les produits d'activation du sodium caloporteur et de l'argon de couverture. Il s'agit de :

- L'argon 41 produit tel que :  ${}^{40}_{18}\text{Ar} + {}^1_0n \rightarrow {}^{41}_{18}\text{Ar} + {}^0_0\gamma$
- Le néon 23 produit tel que :  ${}^{23}_{11}\text{Na} + {}^1_0n \rightarrow {}^{23}_{10}\text{Ne} + {}^1_1p$
- Le fluor 20 produit tel que :  ${}^{23}_{11}\text{Na} + {}^1_0n \rightarrow {}^{20}_9\text{F} + {}^4_2\alpha$
- Le sodium 24 produit tel que :  ${}^{23}_{11}\text{Na} + {}^1_0n \rightarrow {}^{24}_{11}\text{Na} + {}^0_0\gamma$
- Le sodium 22 produit tel que :  ${}^{23}_{11}\text{Na} + {}^1_0n \rightarrow {}^{22}_{11}\text{Na} + 2 {}^1_0n$

Le terme source des produits d'activation a été évalué à partir d'un modèle d'activation neutronique du caloporteur dans le cadre de travaux précédents. Le tableau 6-9 récapitule les activités volumiques moyennes, en sortie des assemblages  $A_{assemblages}$ , estimées par ces travaux réalisés pour Phénix [117] et pour ASTRID [118].

Tableau 6-9 : Terme source des produits d'activation calculés pour les données de Phénix et d'ASTRID.

Produits d'activation	Demi-vie	$A_{assemblages}$ (Phénix)	$A_{assemblages}$ (ASTRID)
${}^{41}\text{Ar}$	1,83 h	900 kBq.m <sup>-3</sup>	2 MBq.m <sup>-3</sup>
${}^{23}\text{Ne}$	37,2 s	74 TBq.m <sup>-3</sup>	140 TBq.m <sup>-3</sup>
${}^{20}\text{F}$	11,0 s	135 TBq.m <sup>-3</sup>	210 TBq.m <sup>-3</sup>
${}^{24}\text{Na}$	15,0 h	113 TBq.m <sup>-3</sup>	250 TBq.m <sup>-3</sup>
${}^{22}\text{Na}$	2,60 a	488 GBq.m <sup>-3</sup>	30 GBq.m <sup>-3</sup>

Mis à part le  ${}^{22}\text{Na}^8$ , lequel ne sera pas dégazé du sodium primaire dans le cadre de ces travaux, nous constatons que les activités estimées pour ASTRID sont environ deux fois plus élevées que celles estimées pour Phénix. Dans le cadre de cette thèse, nous nous plaçons dans un environnement type ASTRID. L'activité volumique d'un produit d'activation PA au volume de mesure est alors pondérée, sur la base des données du tableau 6-9, par un terme de décroissance radioactive paramétré par le temps de transit  $t_r$  tel que:

$$A_{PA} = A_{assemblages} e^{-\lambda t_r} \quad (39)$$

<sup>8</sup> Compte tenu de sa très longue période, les activités estimées dans le tableau 6-9 dépendent surtout de l'hypothèse prise sur le temps d'irradiation (régime de saturation non-atteint).



## Chapitre 6 – Simulation du poste de mesure final et étude de faisabilité

Pour chacun des produits d'activation, les tableaux 6-10 et 6-11 présentent respectivement les émissions gamma et bêta.

Tableau 6-10 : Emissions gamma  $\gamma$  des produits d'activation [119].

Produits d'activation	Energie $\gamma$ (keV)	Intensité (%)
$^{41}\text{Ar}$	1294	100
$^{23}\text{Ne}$	440	33
$^{20}\text{F}$	1634	100
$^{24}\text{Na}$	1369	100
	2754	
$^{22}\text{Na}$	511	180
	1274,5	100

Tableau 6-11: Emissions bêta  $\beta$  des produits d'activation [119].

Produits d'activation	Energie maximale $\beta$ (keV)	Intensité (%)
$^{41}\text{Ar}$	1198	100
$^{23}\text{Ne}$	3936	32
	4376	67
$^{20}\text{F}$	5391	100
$^{24}\text{Na}$	1393	100
$^{22}\text{Na}$	1568	100

Sur les cinq produits d'activation présentés ci-dessus, seuls le  $^{23}\text{Ne}$ , l' $^{41}\text{Ar}$  et le  $^{20}\text{F}$ , sont des gaz rares radioactifs et peuvent être dégazés de celui-ci. La figure 6-48 illustre la réduction du continuum Compton par la seule mise en place du dégazage.

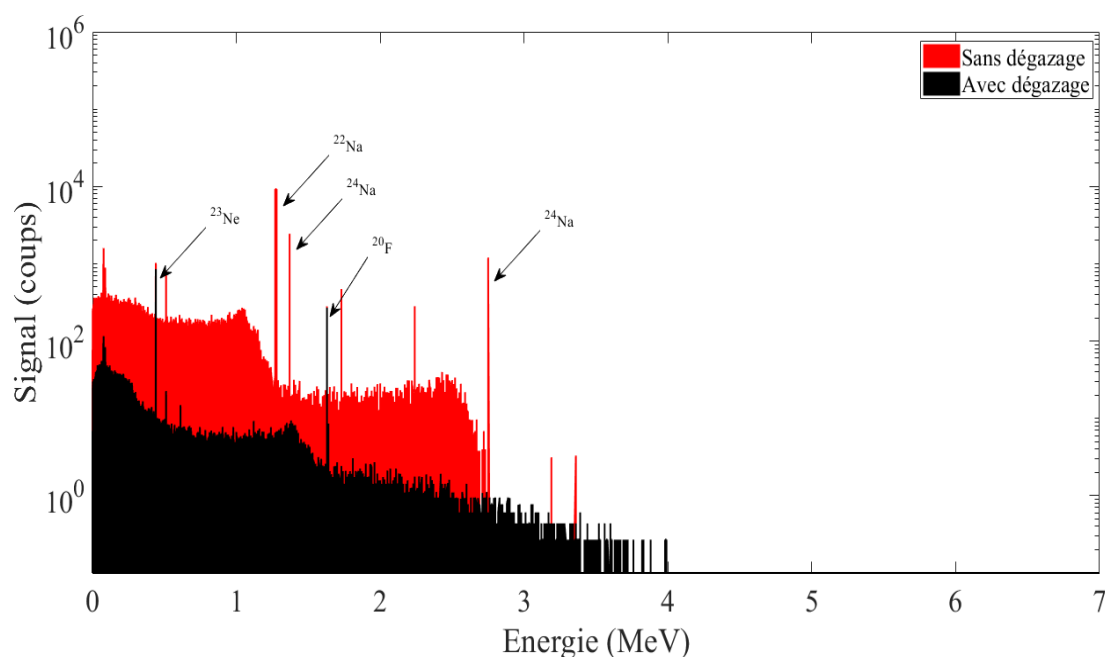


Figure 6-48 : Illustration des spectres avec et sans dégazage (en considérant le terme source du  $^{20}\text{F}$ ).

Bien que le  $^{20}\text{F}$  soit un gaz radioactif, et bien qu'il ait une activité importante ( $210 \text{ TBq.m}^{-3}$ ), ce produit d'activation présente une période de demi-vie très courte (11 s) et une grande affinité chimique avec le sodium caloporteur. Il reste alors piégé dans celui-ci en formant ledit fluorure de sodium NaF. Après dégazage, l'inventaire du bruit de la spectrométrie gamma se limite alors aux deux produits  $^{23}\text{Ne}$  et  $^{41}\text{Ar}$ .

L'estimation du terme source signal au moyen des estimées  $A_{PF}$  et le terme source bruit au moyen  $A_{PA}$  ne nous permet pas d'évaluer la mesurabilité de  $A_{PF}$  dans  $A_{PA}$ . A cette fin, nous présenterons dans la suite de ce chapitre la méthode développée et dédiée à la simulation des signaux de spectrométrie gamma associés aux produits d'activation, en vue d'évaluer les limites de détection des différents produits de fission d'intérêt pour la mesure.

## 2. Méthode

La figure 6-49 présente un organigramme simplifié de la méthodologie de calcul développée pour évaluer les limites de détection des produits de fission après simulation des signaux associés aux produits d'activation.

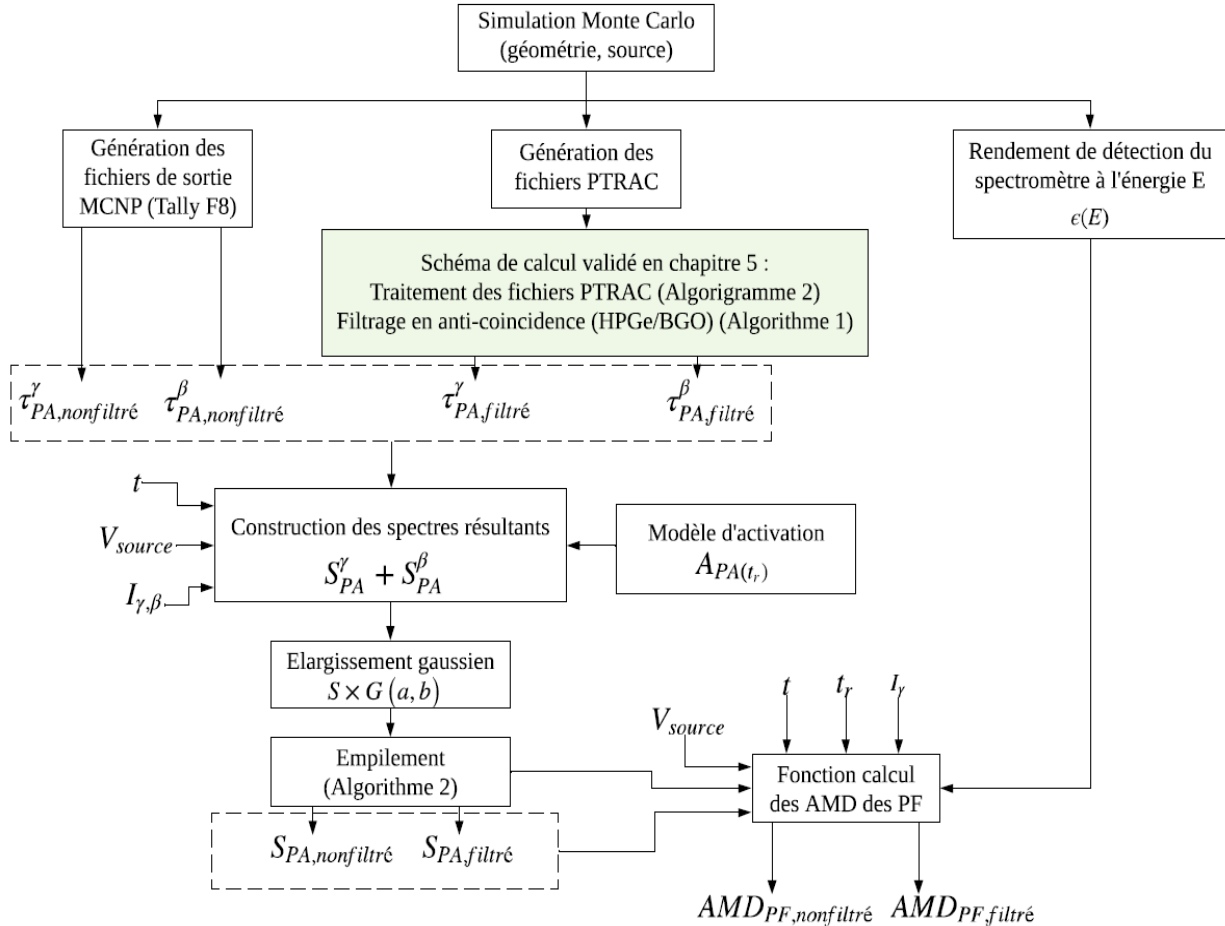


Figure 6-49 : Représentation schématique de la méthodologie de calcul développée durant ces travaux de thèse.

Par la mise en place d'un calcul Monte Carlo (MCNP6.1) sur la base du modèle HPGe/BGO validé dans le chapitre 5, nous avons élaboré une méthodologie de calcul permettant de simuler les signaux des produits d'activation dans le volume de mesure en vue d'estimer les limites de détection  $AMD_{PF,nonfiltré}$  et  $AMD_{PF,filtré}$ .

Dans un premier temps, les termes sources bêta et gamma des produits d'activation sont générés indépendamment les uns des autres dans le calcul MC pour estimer des densités d'énergie déposées indépendantes, d'une part, au moyen du tally F8 (MCNP6) pour la configuration non filtrée, d'autre part, par l'intégration du schéma de calcul validé au chapitre 5 pour la configuration filtrée (post-traitement des fichiers PTRAC et anti-coïncidences HPGe/BGO). Les spectres gamma et bêta sont calculés avec une bonne convergence statistique puis sommés pour obtenir les signaux relatifs à chaque produit d'activation. Dans un second temps, ces signaux sont convolués par un terme d'élargissement gaussien afin de prendre en compte la

résolution en énergie. Enfin, cette méthodologie simule l'effet d'empilement souvent rencontré dans de tels cas d'application à hauts taux de comptage.

Le fond ainsi décrit permettra d'estimer fidèlement des limites de détection associées aux produits de fission pour différents temps de transit et de mesure.

Nous décrirons, dans la suite, les principales briques de cette méthodologie de calcul.

## 2.1. Construction des signaux des produits d'activation

Afin de construire les signaux relatifs à chaque produit d'activation PA, les densités d'énergie déposées  $\tau_{PA}^\gamma$  et  $\tau_{PA}^\beta$  associées à chaque produit d'activation ont été préalablement estimées au moyen d'un calcul Monte Carlo (MCNP6.1) pour chaque type de particule émise (gamma et bêta), en considérant une activité d'un Becquerel. A partir de ces estimées, les signaux gamma  $S_{PA}^\gamma$  et bêta  $S_{PA}^\beta$  d'un produit d'activation, exprimés en coups, ont été ensuite construits à partir des équations (40)

$$\begin{aligned} S_{PA}^\gamma &= \tau_{PA}^\gamma \cdot T_{PA}^\gamma \cdot t \\ S_{PA}^\beta &= \tau_{PA}^\beta \cdot T_{PA}^\beta \cdot t \end{aligned} \quad (40)$$

$\tau_{PA}^\gamma$  et  $\tau_{PA}^\beta$  les réponses données par le tally F8 de MCNP6.1, correspondant à un dépôt d'énergie par particule source générée.  $t$  la durée d'intégration de la mesure (temps d'acquisition).  $T_{PA}^\gamma$  et  $T_{PA}^\beta$  les taux d'émission associés à chaque type de particules, exprimés respectivement en  $\gamma \cdot s^{-1}$  et  $\beta \cdot s^{-1}$ . Ils se calculent à partir de

$$T_{PA}^{\gamma,\beta} = A_{PA} \cdot V_{source} \cdot I_{\gamma,\beta} \quad (41)$$

$A_{PA}$  l'activité volumique du produit d'activation dans le volume de mesure, exprimée en  $Bq \cdot m^{-3}$ .  $V_{source}$  correspond au volume de la capacité de mesure et  $I_{\gamma,\beta}$  l'intensité d'émission gamma ou bêta par désintégration.

Le spectre total  $S$ , résultant des deux contributions gamma et bêta de l'ensemble des produits d'activation, est alors construit au moyen d'une combinaison linéaire des signaux  $S_{PA}^\gamma$  et  $S_{PA}^\beta$  telle que :

$$S = \sum_{PA=1}^n [S_{PA}^\gamma + S_{PA}^\beta] \quad (42)$$

La prise en compte de la composante bêta  $S_{PA}^\beta$  est déterminante en raison du fond significatif induit par sa contribution dans le spectre total résultant  $S$ . La figure 6-50 illustre cette contribution dans le spectre des produits d'activation.

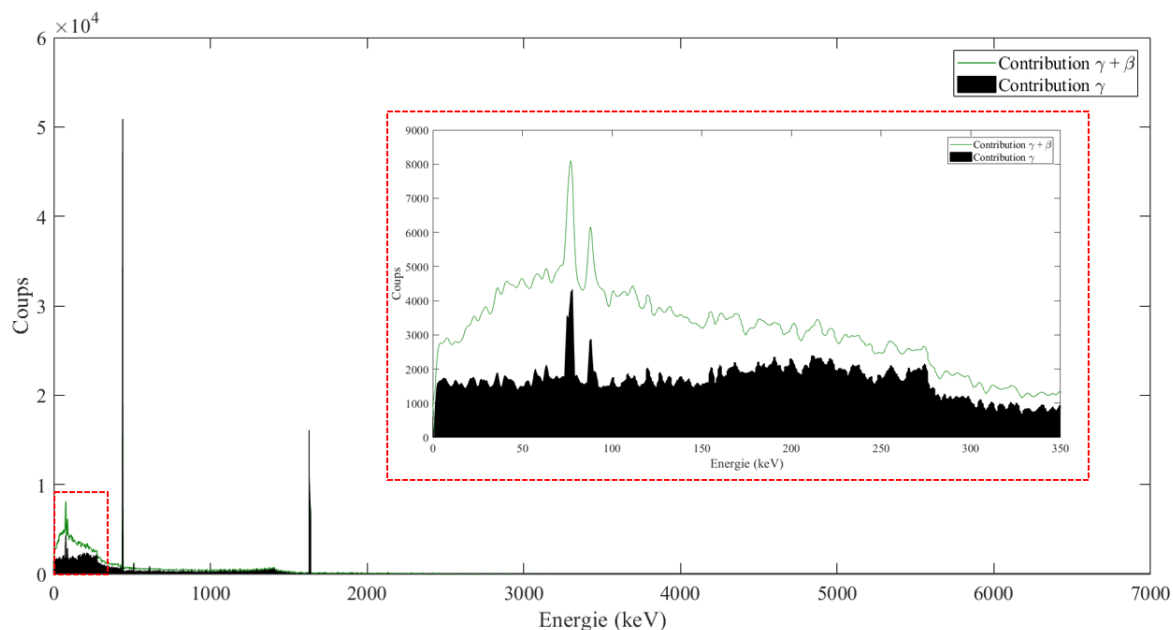


Figure 6-50 : Spectres obtenus avec et sans la prise en compte de la composante bêta.

Il est à noter que cette réponse  $S$  est une estimée simulée ne prenant pas en compte la résolution en énergie des détecteurs, ni les effets d'empilement rencontrés dans une application à hauts taux de comptage. Afin d'obtenir une simulation plus réaliste, nous décrirons dans la section suivante la prise en compte de ces deux phénomènes dans la construction des signaux des produits d'activation, en vue de calculer les activités minimales détectables les plus fidèles possibles.

## 2.2. L'élargissement gaussien et l'empilement

Les signaux résultants  $S$  ont été ensuite convolués par une fonction d'élargissement gaussienne propre au détecteur HPGe. Cet élargissement, centré sur l'énergie  $E$ , est caractérisé par sa largeur totale à mi-hauteur  $LTHM(E)$  de paramètres  $\{a_{HPGe} = 0,025 \text{ MeV}; b_{HPGe} = 1,84 \text{ MeV}^{-1/2}\}$  (cf. Section V.2.2).

Par la suite, nous simulons l'effet d'empilement lequel devient significatif à hauts taux de comptage [120][121]. En effet, de par la nature stochastique d'arrivée des événements sur un détecteur (processus de Poisson), des photons peuvent toujours être émis à des temps suffisamment proches pour que leurs signaux respectifs se chevauchent et s'accumulent partiellement ou totalement. Ce phénomène introduit une distorsion du spectre en énergie, notamment par l'apparition de pics parasites, dénommés pics sommes, et une distorsion du fond (donc critique à l'estimation des activités minimales détectables).

En général, la probabilité d'empilement  $\mathcal{P}$  de deux événements successifs  $e_{i-1}$  et  $e_i$  est fonction du taux de comptage incident  $ICR$  et de la durée moyenne de traitement de l'impulsion  $\tau_m$ . Elle s'écrit [113]

$$\mathcal{P}(\text{empilement}) = 1 - e^{-2 \tau_m ICR} \quad (43)$$

Pour tenir compte des effets d'empilement des événements dans le cadre de cette étude, un grand nombre de tirage aléatoires est réalisé suivant une densité de probabilité  $p(E)$  telle que

$$\forall u \in [0, +\infty[, p(E = u) = \frac{S(u)}{\sum_{u=0}^{+\infty} S(u)} \quad (44)$$

Pour chaque tirage, une sommation conditionnelle des événements est réalisée au moyen de l'algorithme MC détaillé ci-dessous :

Algorithme 2 : Simulation de l'effet d'empilement.

---

*Algorithme de simulation de l'empilement*

---

**Require** :  $\forall r \in [0, E], F(r) = \sum_{u=0}^{u=r} p(E = u), \tau_m,$   
 $P_{pileup} = 1 - \exp(-2 \cdot \tau_m \cdot ICR).$   
 $F \leftarrow$   
**for**  $i = 1$  **to**  $n$  **do**  
     $x \sim U(0, 1)$   
     $j = \text{arg}(F(r) \leq x)$   
     $e_i = F(j)$   
     $x \sim U(0, 1)$   
    **if**  $x \leq P_{pileup}$  **then**  
         $e_i := e_i + e_{i+1}$   
    **else**  
         $Y(e_i) = Y(e_i) + 1$   
    **end if**  
**end for**  
 $Y \leftarrow$

---

Suivant ce schéma de calcul, nous construisons alors les signaux associés aux produits d'activation suivants :

- $S_{PA,nonfiltré}$  est la réponse spectrale totale des produits d'activation enregistrée par le spectromètre primaire sans réjection des anti-coïncidences,
- $S_{PA,filtré}$  est la réponse spectrale totale des produits d'activation enregistrée par le spectromètre primaire avec réjection des anti-coïncidences, reconstruite à partir de l'algorithme de traitement des anti-coïncidences validé au chapitre 5.

Après avoir simulé des réponses spectrales représentatives d'une mesure réelle (la prise en compte de la composante bêta, de la statistique poissonnienne, de la résolution spectrale et de l'empilement), nous pouvons désormais procéder à l'estimation des activités minimales détectables des produits de fission que l'on cherche à mesurer.

### 2.3. L'activité minimale détectable

La capacité d'une chaîne spectrométrique à identifier et à déconvoluer le pic d'absorption totale du signal d'intérêt est déterminée par le taux de comptage attendu dans la région d'intérêt *ROI*, centrée autour d'une énergie *E*, en l'absence de ce signal d'intérêt. Si nous notons  $S(E_j)$  la réponse spectrale simulée du spectromètre HPGe associée aux produits d'activation, le taux de comptage de cette ligne de base s'écrit

$$Y(E) = \sum_{E_j \in ROI(E)} S(E_j) \quad (45)$$

La limite de détection est définie par rapport à deux risques d'erreur :

- le risque dit de première espèce, correspondant aux faux positifs ou détections à tort, noté  $\alpha$  et exprimé en % ;
- le risque dit de deuxième espèce, correspondant aux faux négatifs ou non-détections à tort, noté  $\beta$  et exprimé en %.

La limite de détection ( $\alpha = \beta = 2,5\%$ ) à l'issue d'un comptage de durée  $t$ , notée  $LD_{2,5\%}$  et exprimée en coups, est alors donnée par l'équation (46) [113]

$$LD_{2,5\%} = 2,71 + 3,92\sqrt{2 \cdot Y(E)} \quad (46)$$

Cette limite de détection peut être finalement convertie en une activité minimale détectable volumique  $AMD_{PF}$  (exprimée en  $Bq \cdot m^{-3}$ ) d'un produit de fission PF au poste de mesure suivant l'équation (47) [113]:

$$AMD_{PF}(E) = \frac{LD_{2,5\%}}{\varepsilon I_\gamma t V_{source} e^{-\lambda t_r} [1 - \mathcal{P}(empilement)]} \quad (47)$$

Où  $\varepsilon$  le rendement extrinsèque d'absorption totale à l'énergie  $E$ ,  $I_\gamma$  l'intensité d'émission du rayonnement gamma,  $t$  la durée de la mesure,  $\mathcal{P}(empilement)$  la probabilité d'empilement,  $V_{source}$  le volume de la source,  $t_r$  le temps de transit et  $\lambda$  la constante de décroissance du produit de fission considéré.

Afin de calculer l'activité minimale détectable d'un PF dans une région d'intérêt, des raies d'émission, à la fois caractéristiques et représentatives, ont été sélectionnées. Le tableau 6-12 récapitule les principales raies caractéristiques relatives aux produits de fission.

Tableau 6-12 : Energies d'intérêt des produits de fission [119].

Radio-isotope	Demi-vie	Energie (keV)	Intensité (%)
$^{133}\text{Xe}$	5,24 j	81	37
$^{133\text{m}}\text{Xe}$	2,2 j	233,2	10,2
$^{135}\text{Xe}$	9,14 h	249,8	90
$^{135\text{m}}\text{Xe}$	15,3 m	526,6	80,6
$^{137}\text{Xe}$	3,82 m	445,5	31
$^{138}\text{Xe}$	14,1 m	258,4	31,5
		396,5	6,3
		434,6	20,3
		1768,3	16,7
		2015,8	12,3
$^{85\text{m}}\text{Kr}$	4,5 h	151,2	75
$^{87}\text{Kr}$	1,3 h	402,6	49,6
		845,4	7,3
		2554,8	9,2
$^{88}\text{Kr}$	2,8 h	196,3	26
		834,8	13
		1529,8	11
		2392,1	34,6
$^{89}\text{Kr}$	3,15 m	220,9	20,1
		497,4	6,6
		586	16,7
		904,3	7,2
		1472,8	7

Après avoir décrit la méthodologie de calcul, nous pouvons désormais calculer les estimées suivantes :

- $AMD_{PF,nonfiltré}$ , en ne considérant pas le filtrage en anti-coïncidence,
- $AMD_{PF,filtré}$ , en considérant le filtrage en anti-coïncidence.

Après validation de la géométrie du calcul, ces estimées seront d'abord comparées conjointement, afin de conclure sur l'apport du filtrage en anti-coïncidences sur l'activité minimale détectable.



### 3. Optimisation de la géométrie finale

Dans ce paragraphe, nous nous basons sur la méthodologie de calcul décrite dans la section précédente, afin d'optimiser les derniers paramètres du poste de mesure RNR-Na final. Les paramètres géométriques et physiques du système à suppression Compton, composé d'un spectromètre HPGe de type REGe1020 et d'un détecteur de garde BGO, correspondent à ceux de la configuration du SSC caractérisée et optimisée dans le chapitre précédent. Les briques matérielles constitutives de ce poste de spectrométrie gamma sont représentées sur la figure 6-51.

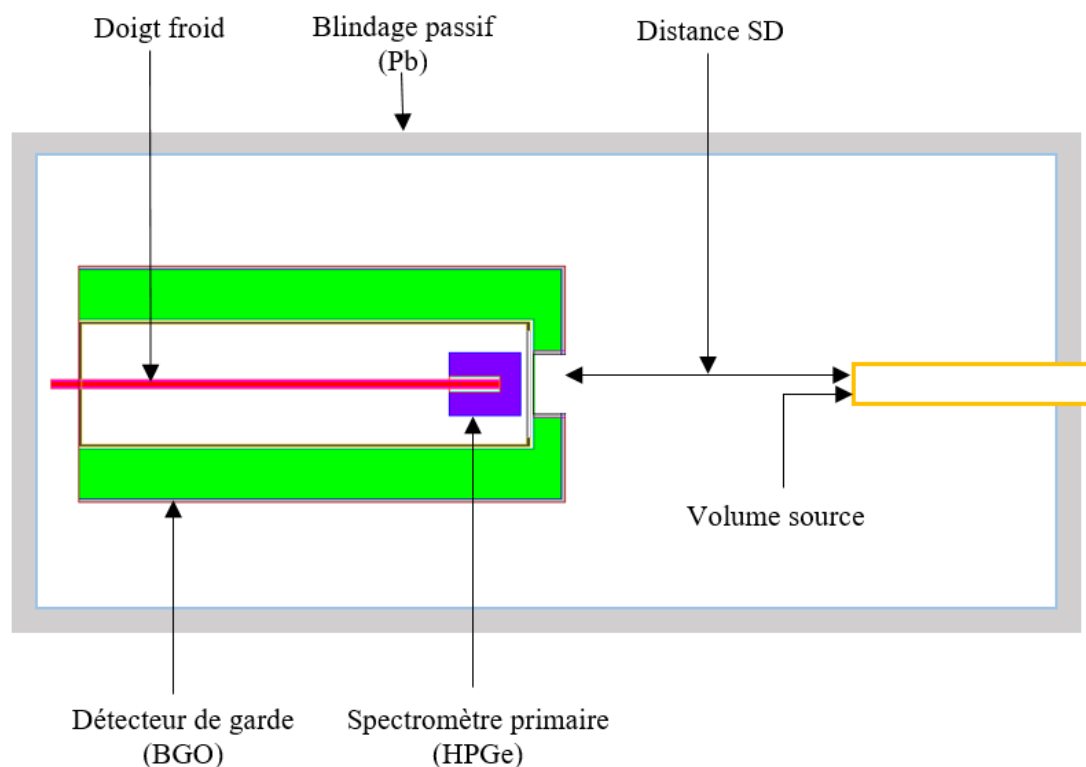


Figure 6-51 : Visualisation 2-D du modèle MCNP6.1 du poste final de spectrométrie gamma.

Après avoir circulé dans le cœur du réacteur, l'échantillon du caloporteur à caractériser sera prélevé au-dessus des assemblages. La tuyauterie de prélèvement assure son passage par une chambre de dégazage où un gaz vecteur, généralement de l'argon, véhicule les gaz de fission, lesquels sont transportés, suivant un temps de transit  $t_r$ , vers le volume source de mesure. Le sodium, quant à lui, retourne par gravitation dans le cœur.

Le volume source est un cylindre d'une longueur de 26 mm et d'un rayon de 3 mm, et est située à une distance  $d$  de la diode HPGe. Le système à suppression Compton HPGe/BGO et la capacité de mesure sont intégrés dans une épaisseur de 15 mm de plomb, lequel sera nécessaire dans le cadre d'une mesure réelle pour limiter le bruit de fond environnant et, *a fortiori*, limiter le débit de dose dans l'environnement du poste de mesure. Cette épaisseur de plomb est

recouverte à l'intérieur de 2 millimètres de cuivre, afin d'atténuer les raies X du plomb entre 75 et 80 keV.

La distance optimale entre la source et le détecteur  $d$  a été déterminée de manière à limiter la saturation des détecteurs HPGe/BGO et à respecter un taux de coïncidences fortuites acceptable. Dans un système à coïncidence, ce taux est estimé au premier ordre par l'équation (48) [122]:

$$Q_{HPGe,BGO} = 2 \cdot \tau_c \cdot ICR_{HPGe} \cdot ICR_{BGO} \quad (48)$$

où  $Q_{HPGe,BGO}$  représente la contribution estimée des événements fortuits au nombre total des coïncidences enregistrées.  $\tau_c$  est la durée de la fenêtre de coïncidence,  $ICR_{HPGe}$  et  $ICR_{BGO}$  sont les taux de comptage respectifs enregistrés sur les détecteurs HPGe et BGO.

La figure 6-52 représente l'évolution des taux de comptage totaux incidents liés aux produits d'activation enregistrés sur les détecteurs HPGe et BGO, en fonction de la distance source détecteur.

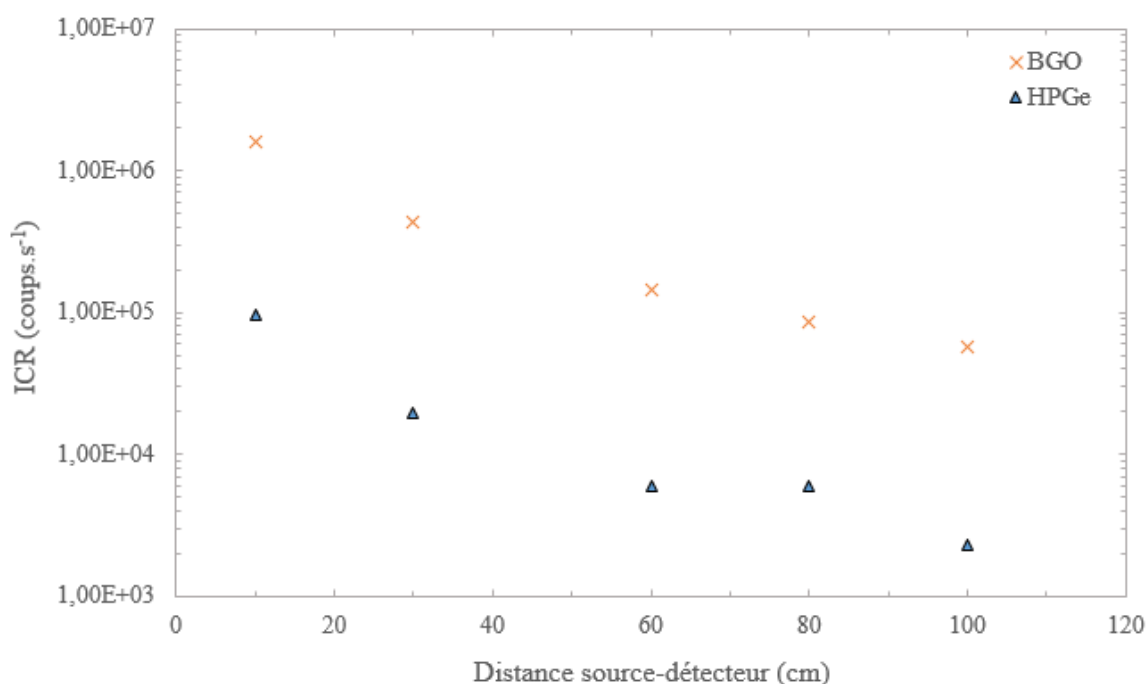


Figure 6-52 : Evolution des taux de comptage en fonction de la distance source-détecteur.

Dans le cadre de cette étude, nous assumons un taux de coïncidences fortuites inférieur à 1 %. Ceci se traduit par des taux de comptage totaux incidents inférieurs à  $10^5$  coups.s<sup>-1</sup> sur les deux détecteurs. La figure 6-52 montre qu'une distance de 80 cm satisfait la condition sur les taux de comptage pour les deux détecteurs HPGe et BGO. Ainsi, pour l'évaluation des activités minimales détectables, nous retenons une distance  $d = 80$  cm.

## 4. Résultats

Après validation de la méthodologie de calcul (*cf.* Section 2) et optimisation de la géométrie (*cf.* Section 3), les activités minimales détectables  $AMD_{PF,nonfiltré}$ ,  $AMD_{PF,nonfiltré}(E)$  sont estimées et répertoriées en Annexe B pour différents temps de transit (5 s, 10 s, 30 s, 60 s, 300 s, 600 s, 900 s et 1200 s) et d'intégration de la mesure (60 s, 600 s, 3600 s). A titre d'illustration, nous obtenons des  $AMD_{PF,nonfiltré}$  de l'ordre de 10 GBq.m<sup>-3</sup> à 100 GBq.m<sup>-3</sup> pour un temps de transit  $t_r = 60$  s et un temps de mesure  $t = 60$  s.

Dans la suite de ce chapitre, nous proposons d'abord d'évaluer l'apport du filtrage sur la réduction des activités minimales détectables, en comparant les estimées  $AMD_{PF,nonfiltré}(E)$  aux  $AMD_{PF,filtré}$ , avant de conclure sur la mesurabilité des produits de fission dans le cadre d'un diagnostic précoce des ruptures de gaine.

### 4.1. Le gain du filtrage sur l'activité minimale détectable

Afin d'évaluer l'apport du système à suppression Compton dans le poste de spectrométrie RNR-Na, nous introduisons le facteur  $G$ , défini comme le rapport

$$G(E) = \frac{AMD_{PF,nonfiltré}(E)}{AMD_{PF,filtré}(E)} \quad (49)$$

Pour l'évaluation de  $G$ , nous possédons deux degrés de liberté que sont le temps de transit  $t_r$  et le temps de mesure  $t$ . A un temps de mesure équivalent, nous étudions alors le gain du filtrage pour un temps de transit relativement court  $t_r = 60$  s par rapport à la période du produit d'activation le plus pénalisant pour la mesure, soit le <sup>23</sup>Ne (39 s), et un temps de transit relativement long  $t_r = 600$  s par rapport à cette période.

La figure 6-53 représente la superposition des estimées  $AMD_{PF,nonfiltré}$  et  $AMD_{PF,filtré}$  pour quelques raies d'intérêt en présence du fond d'émission  $S_{PA,nonfiltré}$  et  $S_{PA,filtré}$  simulé pour un temps de transit  $t_r = 60$  s et un temps de mesure  $t = 60$  s.

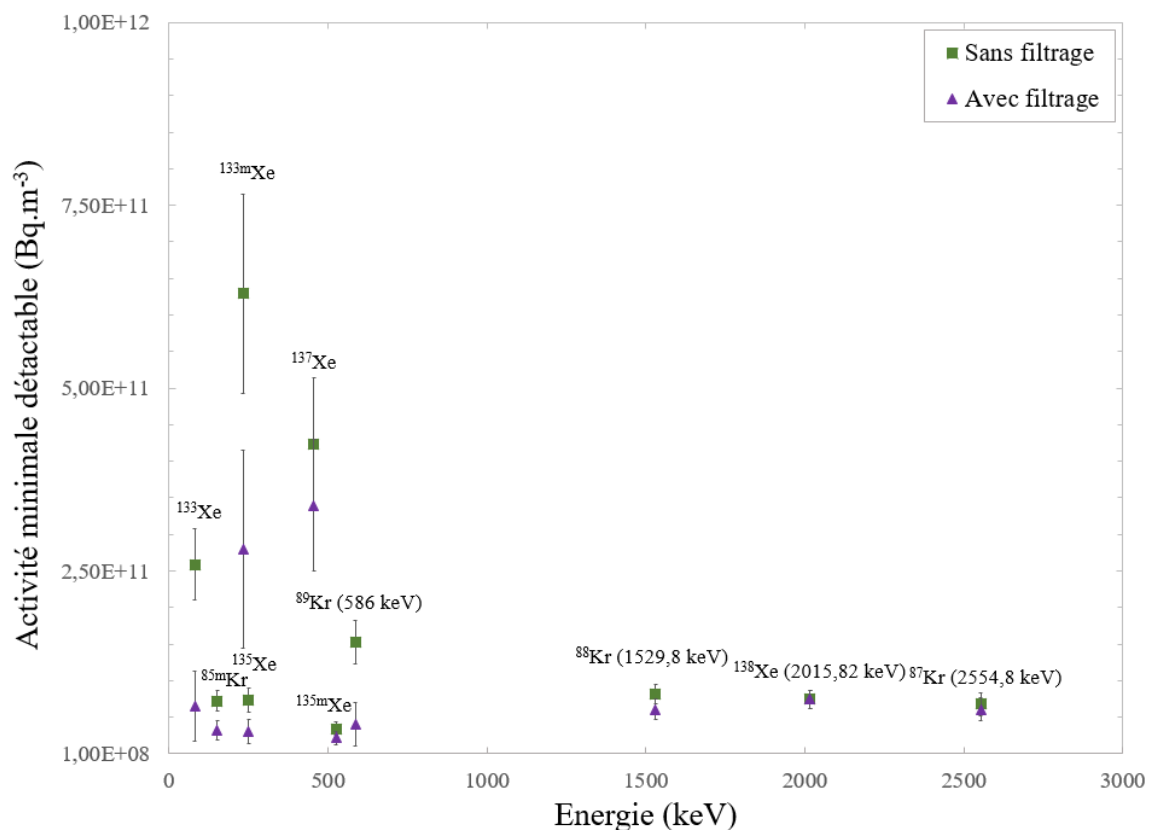


Figure 6-53 :  $AMD_{PF,nonfiltré}$  et  $AMD_{PF,filtré}$  pour l'ensemble des isotopes d'intérêt avec un temps de transit  $t_r = 60$  s et un temps de mesure  $t = 60$  s.

Nous pouvons remarquer, en premier lieu, que l'application du filtrage permet d'abaisser les activités minimales détectables de tous les isotopes sans exception. Ce filtrage garantit un gain  $G$  en réduction des  $AMD_{PF,nonfiltré}$  entre 1,01 (cas du <sup>138</sup>Xe à 2015,82 keV) et 4 (cas du <sup>133</sup>Xe à 81 keV) au maximum. A un temps de transit relativement court (1 min), les tendances de la figure 6-53 montrent que ce type de système à suppression Compton, opérant sur le bruit, est plus profitable aux énergies inférieures à 440 keV, *i.e.* en deçà de la raie caractéristique du <sup>23</sup>Ne.

La figure 6-54 représente la superposition des estimées  $AMD_{PF,nonfiltré}$  et  $AMD_{PF,filtré}$  pour les mêmes raies d'intérêt pour un temps de transit plus long  $t_r = 600$  s et un temps de mesure équivalent  $t = 60$  s.

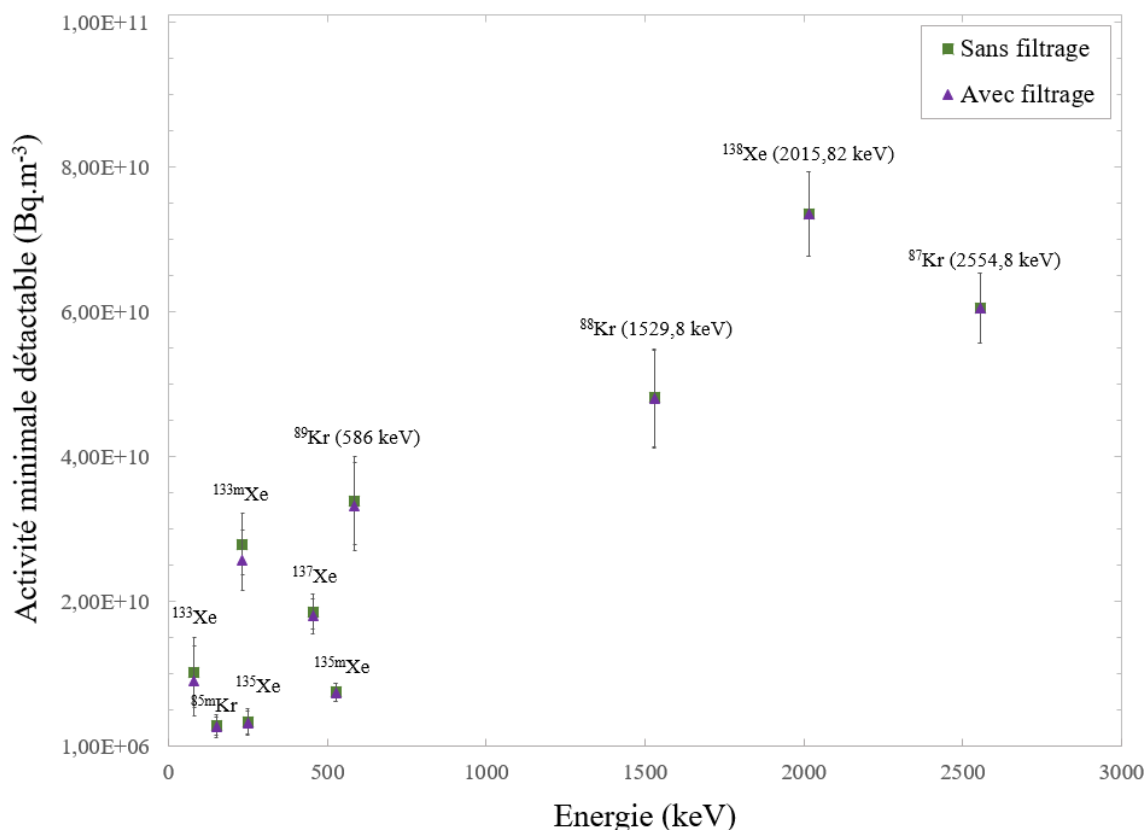


Figure 6-54 :  $AMD_{PF,nonfiltré}$  et  $AMD_{PF,filtré}$  pour l'ensemble des isotopes d'intérêt avec un temps de transit  $t_r = 600$  s et un temps de mesure  $t = 60$  s.

La figure 6-54 montre que les AMD décroissent avec le temps de transit comparées à celles de la figure 6-53. En effet, un temps de transit relativement long garantit une décroissance du <sup>23</sup>Ne qui chute plus rapidement que les autres produits de fission de période plus importante (de 3,15 min à 5,24 jours). Par ailleurs, et comme attendu, le filtrage n'a pas d'apport dans ce cas de figure avec  $G \approx 1$  en raison de l'apport du temps de transit permettant au <sup>23</sup>Ne de décroître naturellement.

La comparaison des résultats obtenus pour différents temps de transit et de mesure, présenté en Annexe B, nous a amenés à formuler la conclusion suivante que l'on déclinera sous forme de questions :

- Quelle est la période du produit de fission que l'on cherche à détecter par rapport à la période du <sup>23</sup>Ne ? Cherche-t-on à mesurer un produit de fission quelconque (mode de prospection globale) ? Ou à dégager une tendance de la courbe  $R/B$  pour déceler un phénomène de recul par mesure d'isotopes de période courte en mode de prospection ciblée (<sup>137</sup>Xe et <sup>89</sup>Kr) ?
- Dans quelle région d'intérêt se situe la raie caractéristique du produit de fission à mesurer par rapport à celle de l'<sup>41</sup>Ar (1694 keV) et surtout par rapport au <sup>23</sup>Ne (440 keV) ?
- Quel est le temps de mesure le plus favorable à la détection des produits de fission ? Comme le montre les résultats en Annexe B, les AMD diminuent en augmentant le

temps de mesure. Cependant, celui-ci doit rester le plus faible possible dans le cadre d'une détection précoce des ruptures de gaine.

Le compromis à atteindre entre la détection (mesure-t-on quelque chose ?) et la précocité du diagnostic (suivant quel  $t_r$ ?  $t$  ?) nous permettra alors d'évaluer la mesurabilité des produits de fission et répondre aux questions suivantes :

- Quelle est la réduction à atteindre pour pouvoir mesurer quelque chose ?
- L'opportunité d'un SSC dans la mesurabilité des PFs ?

## 4.2. Conclusion sur la mesurabilité des produits de fission

Afin de conclure sur la mesurabilité des produits de fission, les activités minimales détectables  $AMD_{PF,nonfiltré}$  et  $AMD_{PF,filtré}$ , estimées dans ce chapitre, doivent être comparées aux activités  $A_{PF}$  calculées au moyen du modèle terme source du chapitre 4. Ainsi, nous introduisons un facteur de mérite FoM, défini comme un seuil de détection, reliant ces deux estimées tel que

$$FoM = \frac{A_{PF}}{AMD_{PF}} \quad (50)$$

Si  $FoM < 1$ , cela signifie que l'on n'est pas capable de mesurer ledit PF.

Si  $FoM \geq 1$ , cela signifie que l'on est capable de mesurer ledit PF.

Nous rappelons que l'on possède deux degrés de liberté, à savoir le temps de la mesure  $t$  et le temps de transit  $t_r$ , avec et sans filtrage SSC. Dans le cadre d'un diagnostic précoce et rapide, nous figeons le temps de transit à un temps raisonnablement rapide, soit 60 s, et le temps de mesure à 60 s. Cette configuration, certes pénalisante pour la mesure, permet de déceler la puissance d'une telle instrumentation pour établir un diagnostic rapide et efficace dès les premiers instants d'une rupture de gaine.

Nous proposons dans la suite de commenter les résultats obtenus sur la mesurabilité et la détectabilité des produits de fission en prospection globale GN et prospection ciblée G1 au moyen du FoM introduit.

### 4.2.1. Mesurabilité des PFs en prospection globale

Dans le cadre de Phénix, la prospection des ruptures de Phénix par le mode de surveillance globale permettait de détecter un assemblage fuyard sur un prélèvement de sodium représentatif de tous les assemblages cœur (*cf.* Chapitre 2). Pour ce mode de prospection, nous évaluons alors le facteur de mérite FoM introduit précédemment en fonction de la constante de décroissance des PFs dans trois configurations. A temps de mesure équivalent  $t = 60$  s, nous comparons :

- La configuration 1 où on considère un temps de transit  $t_r = 60$  s, sans application du filtrage SSC,

- La configuration 2 où on considère un temps de transit  $t_r = 900$  s équivalent à celui déployé sur Phénix par la mise en place des lignes à retard.
- La configuration 3 où on considère un temps de transit  $t_r = 60$  s, avec application du filtrage SSC,

La figure 6-55 représente les facteurs de mérite obtenus en fonction de la constante de décroissance  $\lambda$  des isotopes d'intérêt dans les trois configurations.

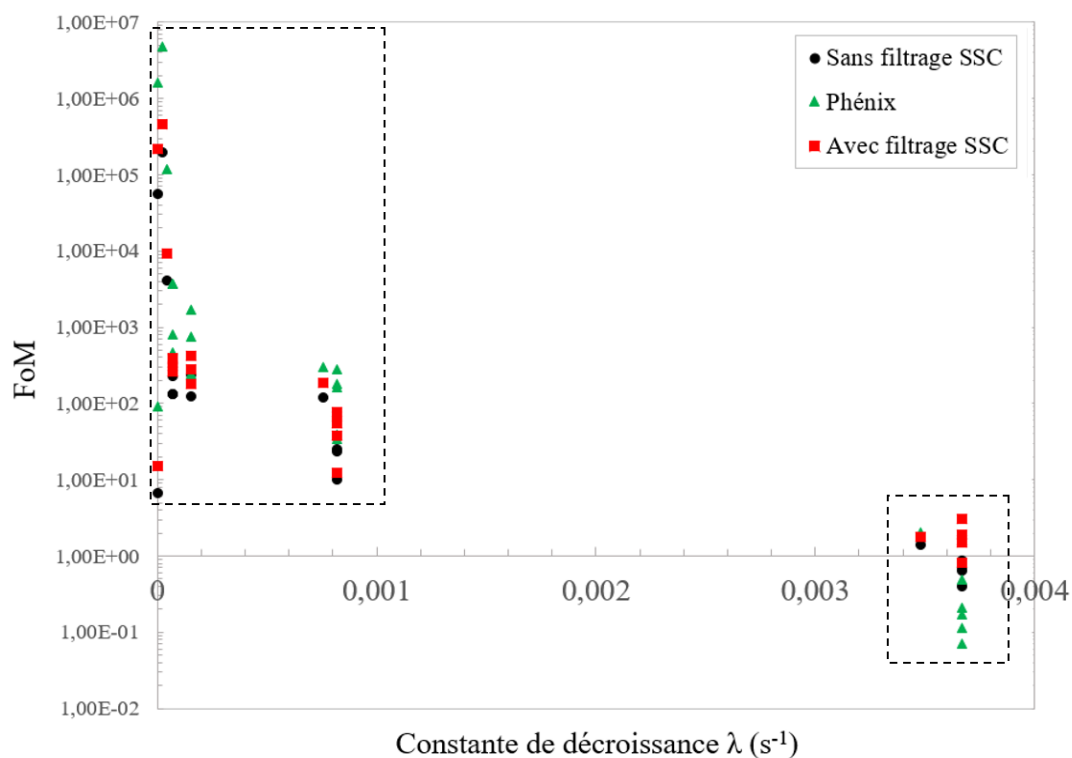


Figure 6-55 :  $FoMs$  obtenus pour les isotopes d'intérêt avec un temps de transit  $t_r = 60$  s et un temps de mesure  $t = 60$  s. Pour chaque radionucléide les principales raies d'émission ont été considérées.

Les figures 6-56 et 6-57 représentent des agrandissements des zones sélectionnées (en pointillés) sur la figure 6-55, relatifs aux vies longues (>14 min) et aux vies courtes (<4 min).

:

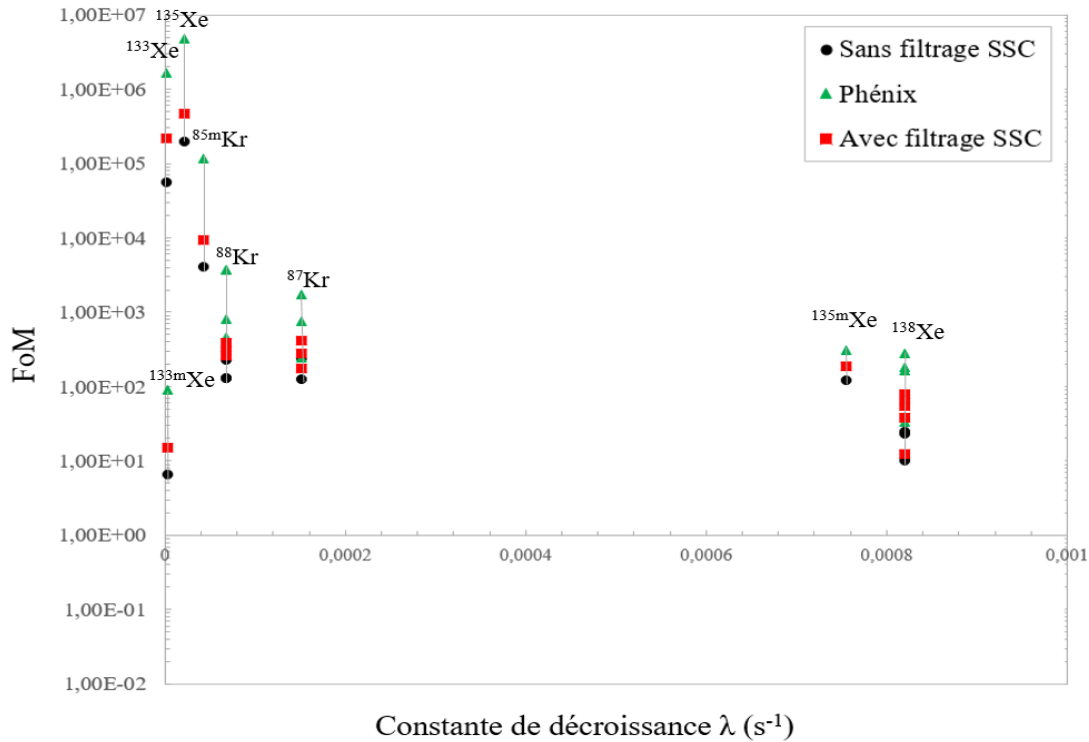


Figure 6-56 : *FoMs* obtenus pour les isotopes d'intérêt de période moyenne et longue à un temps de transit  $t_r = 60$  s et un temps de mesure  $t = 60$  s en prospection globale et pendant la bouffée de relâchement.

Nous remarquons sur la figure 6-56 que les facteurs de mérite associés aux produits de fission sont tous supérieurs à 1. Cela démontre la mesurabilité des isotopes <sup>133</sup>Xe, <sup>133m</sup>Xe, <sup>135</sup>Xe, <sup>85m</sup>Kr, <sup>88</sup>Kr, <sup>87</sup>Kr, <sup>135m</sup>Xe et <sup>138</sup>Xe pendant la phase de dépressurisation (bouffée) dans le mode de prospection globale. Nous pouvons également remarquer que l'implémentation du filtrage SSC améliore légèrement la mesurabilité des produits de fission de vie moyenne et longue pour le temps de transit considéré. Enfin, la configuration Phénix présente des conditions favorables à la détection de ces PFs, en raison de l'implémentation des lignes à retard qui permettent de désactiver naturellement le <sup>23</sup>Ne.



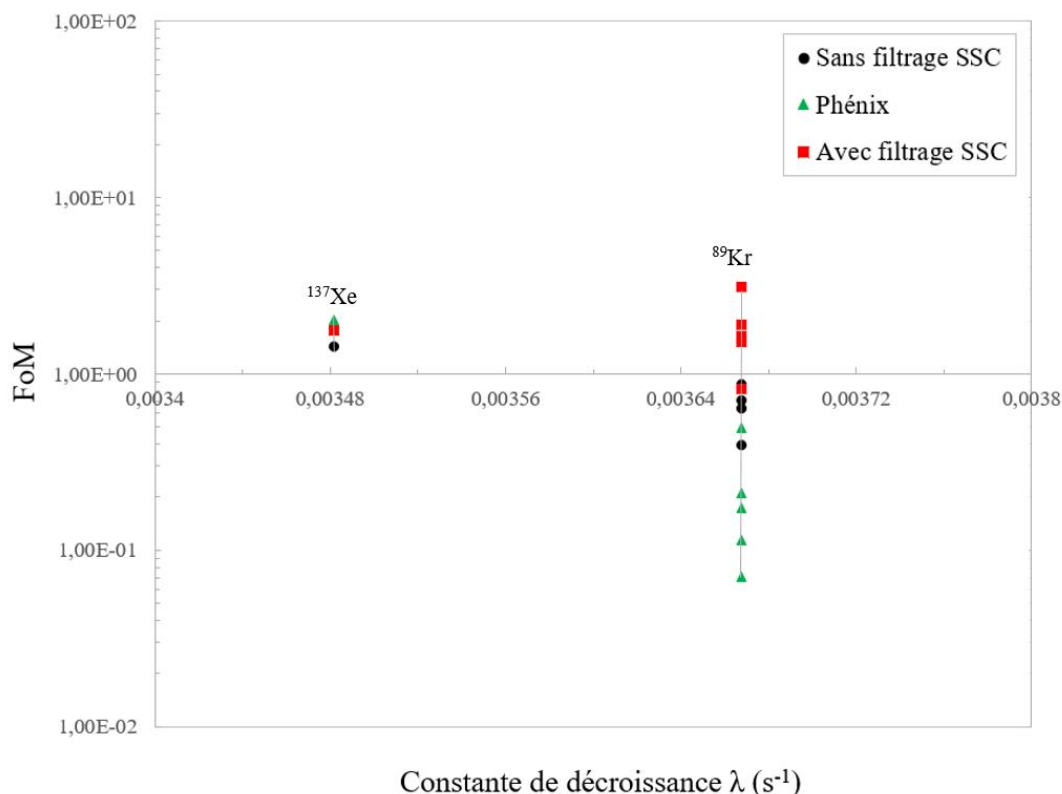


Figure 6-57 : *FoMs* obtenus pour les isotopes d'intérêt de période courte à un temps de transit  $t_r = 60$  s et un temps de mesure  $t = 60$  s en prospection globale et pendant la bouffée de relâchement.

La figure 6-57 montre un facteur FoM supérieur à l'unité pour le <sup>137</sup>Xe, ce qui prouve sa détectabilité dans les trois configurations de mesure. Ce résultat est en accord avec le retour d'expérience de la centrale Phénix, où le radio-isotope <sup>137</sup>Xe avait été effectivement détecté, même après avoir séjourné dans les lignes à retard destinées à la désactivation du <sup>23</sup>Ne [31].

En revanche, la littérature ne fait pas mention de la détection du <sup>89</sup>Kr. Ce constat corrobore également les résultats de la figure 6-57, où le facteur de mérite FoM est bien inférieur à l'unité dans la configuration Phénix. Par ailleurs et pour un temps de transit équivalent, le résultat de cette étude témoigne de l'apport du filtrage du bruit au moyen d'un système à suppression Compton sur la mesurabilité du <sup>89</sup>Kr. En effet, la mise en place du filtrage SSC, assure une réduction d'un facteur 4 des  $AMD_{PF,nonfiltré}$  et une détection de quatre raies caractéristiques du <sup>89</sup>Kr (497,4 keV, 586 keV, 904,4 keV, 1472,8 keV).

Pour ce mode de prospection, la détection d'un ou de plusieurs produits de fission quelle que soit leur période suffit pour repérer une rupture de gaine. La principale valeur ajoutée de cette étude, n'est pas la preuve de mesurabilité des PFs en soi, mais bel et bien le temps de réponse de la spectrométrie gamma qu'offre le système à suppression Compton. En effet, grâce à cette étude, nous montrons un gain de 14 min (passage de 15 min à 1 min) sur le temps de transit par suppression des lignes à retard déployées sur Phénix et pour un temps de mesure équivalent. En mode de prospection globale, la détection d'un produit de fission d'intérêt, quel qu'il soit, alarmera l'exploitant sur l'existence d'une rupture de gaine. Un scan LRG de tous les

assemblages permettrait alors de repérer l'assemblage défectueux et d'enclencher sur celui-ci un suivi en mode de prospection ciblée.

#### 4.2.2. Mesurabilité des PFs en prospection ciblée

Ce mode de prospection ciblé intéresse particulièrement l'exploitant pour suivre l'évolution d'une rupture et déceler une éventuelle mise en contact entre le combustible et le sodium. Pour cela, les fractions relâchées  $R/B$  sont calculées pour chaque produit de fission mesuré et classées en fonction de leurs constantes radioactives  $\lambda$  (cf. Chapitre 4). Ainsi, il suffirait de mesurer au moins deux produits de fission de période courte (par exemple  $^{137}\text{Xe}$  et  $^{89}\text{Kr}$ ) afin de dégager rapidement l'apparition d'une inflexion de la courbe  $\log(R/B)$  vers les  $\lambda$  élevées. Dès le premier contact entre le combustible et le sodium, une composante constante s'ajoute à la droite décroissante décrite par la courbe  $\log(R/B)$  en fonction de  $\log(\lambda)$ , signant ainsi l'apparition du mode de rejet par recul. C'est là où réside tout l'intérêt de prouver la mesurabilité des isotopes de courtes vies par spectrométrie gamma car seuls ces derniers permettent de révéler efficacement l'apparition du rejet par recul. Dans la suite, nous nous intéressons particulièrement à étudier la mesurabilité du  $^{89}\text{Kr}$ , lequel possède la période la plus courte parmi les isotopes d'intérêt et sa détection enrichira l'inventaire des produits de fission s'arrêtant jusqu'alors au  $^{137}\text{Xe}$ .

Nous étudions prioritairement la mesurabilité du  $^{89}\text{Kr}$  en fonction du temps de transit, afin de voir quelle durée est la plus favorable à sa détection dans les configurations avec et sans filtrage SSC. Le temps de mesure est quant à lui fixé à 60 s. La figure 6-58 montre les facteurs de mérite FoMs associées à ce produit de fission en fonction de  $t_r$  sans application du filtrage SSC.

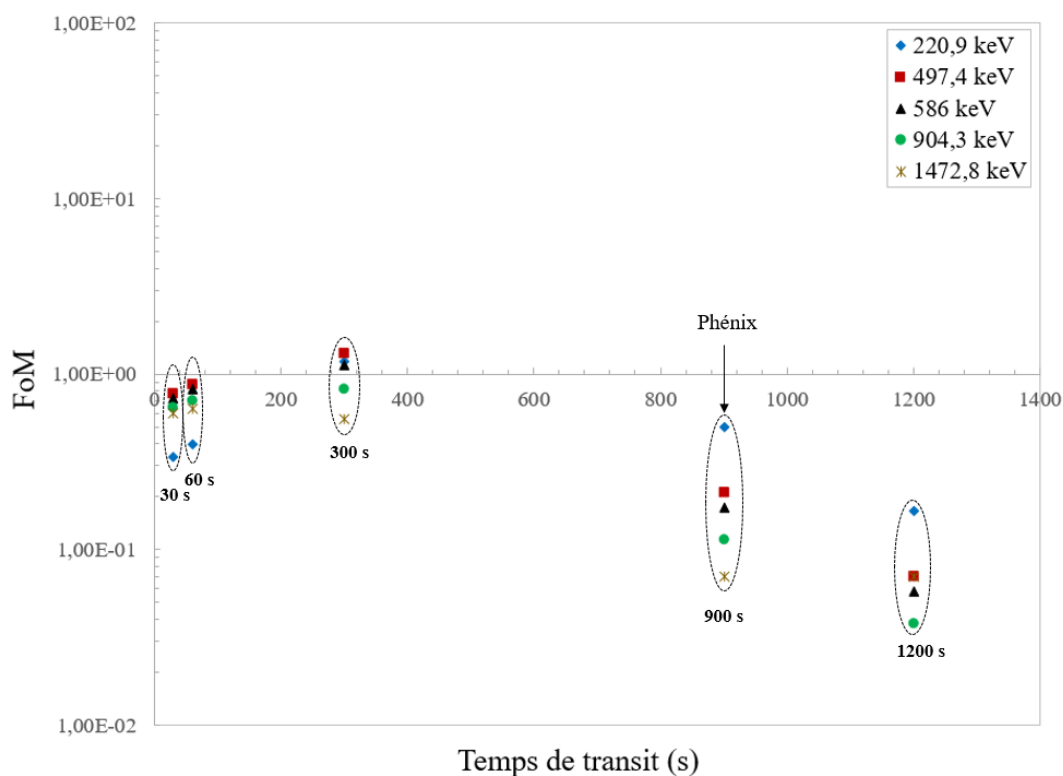


Figure 6-58 : *FoMs* obtenus sans filtrage SSC en anti-coïncidence pour le  $^{89}\text{Kr}$  en fonction du temps de transit à un temps de mesure  $t = 60$  s.

Les résultats de la figure 6-59 corroborent, encore une fois, le retour d'expérience dans la configuration Phénix. En effet, le filtrage du bruit par des lignes à retard imposant un refroidissement d'environ 15 minutes rend la mesurabilité de ce produit de fission difficile du fait qu'il se désactive également en même temps que le bruit.

Par ailleurs, ces résultats montrent qu'il serait possible de détecter quelques raies caractéristiques du  $^{89}\text{Kr}$  avec un temps de transit d'environ 300 s. Cependant, aucun point de comparaison expérimental n'existe sur la détectabilité de ce produit de fission à un temps de transit équivalent.

Le dernier enseignement de cette étude est que, pour des temps de transit courts (30 s et 60 s), ce produit de fission ne peut pas être détecté en raison du bruit prédominant induit par le  $^{23}\text{Ne}$ .

Après application du filtrage SSC, la figure 6-60 montre les facteurs de mérite obtenus pour le  $^{89}\text{Kr}$  en fonction du temps de transit.

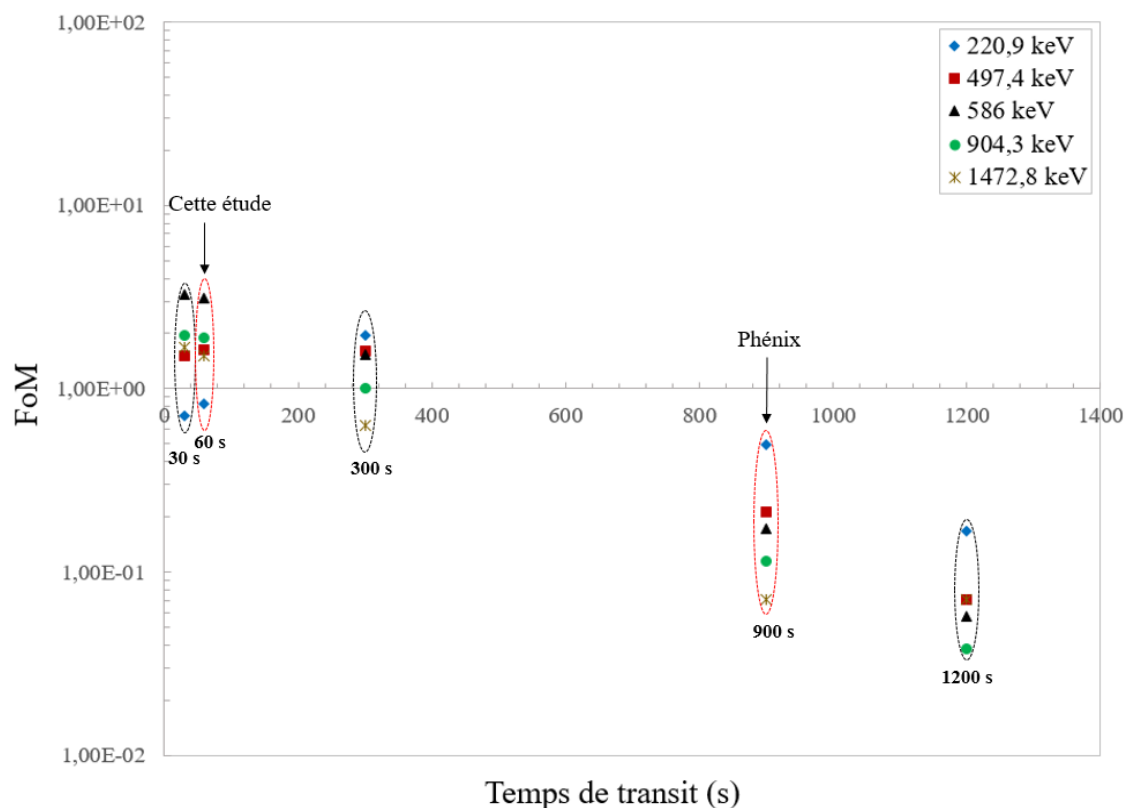


Figure 6-61 : *FoMs* obtenus avec filtrage SSC en anti-coïncidence pour le  $^{89}\text{Kr}$  en fonction du temps de transit à un temps de mesure  $t = 60 \text{ s}$ .

Nous pouvons remarquer ici que, grâce à la mise en place du filtrage SSC, un temps de transit de 15 min (Phénix) ou supérieur n'est guère favorable à la détection du  $^{89}\text{Kr}$ . Ce constat va dans le sens des conclusions formulées à la fin de la section 4.1, où le filtrage n'a plus d'intérêt pour des temps de transit longs, sachant que le bruit dû au  $^{23}\text{Ne}$  va décroître naturellement.

Le résultat de cette étude témoigne de l'apport du filtrage SSC sur la mesurabilité du  $^{89}\text{Kr}$  à des temps de transit relativement courts (30 s et 60 s). La mise en place de ce filtrage assure une réduction des activités minimales détectables d'un facteur 4, offrant la détectabilité de 4 raies d'intérêt du  $^{89}\text{Kr}$ .

Outre l'amélioration des temps de réponse passant de 15 min à 1 min, la preuve de mesurabilité du  $^{89}\text{Kr}$  grâce au filtrage SSC constitue un argument clé de la puissance du diagnostic que peut offrir une spectrométrie gamma bas bruit dans la surveillance des ruptures de gaine d'un RNR-Na.

## 5. Conclusion

Après avoir défini le terme source des produits d'activation, nous avons implémenté la simulation de la mesure spectrométrique au moyen d'une méthodologie intégrant plusieurs phénomènes représentatifs d'une mesure réelle. Les principales étapes de cette méthodologie comprennent : la construction des réponses spectrales bêta et gamma associées aux produits d'activation, la prise en compte de l'élargissement gaussien des détecteurs, la simulation de l'effet d'empilement rencontré dans des applications à hauts taux de comptage et la gestion des coïncidences fortuites.

Grâce à cette modélisation, les activités minimales détectables associées aux produits de fission ont été évaluées en présence du fond de diffusion Compton généré par les produits d'activation pour un temps de transit de 60 s et un temps de mesure de 60 s. Le filtrage SSC a permis une réduction d'un facteur 4 des activités minimales détectables.

Dans la deuxième partie de cette étude, les activités minimales détectables  $AMD_{PF}$  ont été comparées aux activités attendues  $A_{PF}$ , précédemment évaluées au chapitre 4, au moyen d'un facteur de mérite défini par le rapport de  $A_{PF}$  sur  $AMD_{PF}$ . Au moyen de cet indicateur, nous avons conclu sur la mesurabilité de tous les produits de fission en mode de prospection globale avec un temps de réponse global pour la spectrométrie gamma de 2 minutes. Comparée à la configuration existante sur Phénix, ce résultat montre que le filtrage SSC permet une réduction du temps de transit d'environ 14 min. Nous avons, en conclusion de l'étude, démontré l'apport du filtrage sur la mesurabilité du  $^{89}\text{Kr}$  par le mode de prospection ciblée à un temps de réponse global pour la spectrométrie gamma de 2 minutes. La détectabilité du  $^{89}\text{Kr}$  constitue un dépassement de l'art. L'enrichissement de la courbe  $\log(R/B)$  aux  $\lambda$  élevés ainsi permis est d'une grande valeur ajoutée, aux conséquences pratiques très importantes pour la stratégie de sûreté des RNR-Na. En effet, ce nouveau point renseigne, plus efficacement qu'auparavant, sur toute mise en contact entre le combustible et le sodium, et l'évolution d'une rupture acceptable vers une rupture étroite plus préoccupante en terme de sûreté du réacteur.

## CONCLUSION GENERALE

Les réacteurs à neutrons rapides constituent une réponse technologique permettant de répondre à la croissance des besoins énergétiques, à la pérennisation des ressources, à la lutte contre la prolifération des armes nucléaires et au respect de l'environnement. Des objectifs pour un nucléaire durable qui prend sa part dans le mix énergétique ont été définis par le forum international GIF IV. Les travaux de cette thèse s'inscrivent dans le cadre de la filière sodium RNR-Na, pour laquelle la France possède un socle de compétences marqué par des réalisations historiques comme Rapsodie, Phénix et Superphénix. Outre les progrès effectués sur la conception du cœur CFV pour maîtriser la réactivité en situation accidentelle, des exigences de sûreté et de disponibilité sont fixées pour les futurs RNR-Na et impliquent, entre autres, une surveillance fine de tout défaut d'étanchéité de la première barrière de confinement, à savoir la gaine combustible. Historiquement, deux modules complémentaires ont été dédiés à la surveillance et à la gestion des pertes d'étanchéité de la gaine :

- Un module DND permet de détecter et suivre l'évolution du signal de produits de fission émetteurs de neutrons retardés (iode, brome) signant la phase d'une rupture étroite indésirable. Cette instrumentation a fait ses preuves sur les RNR-Na français, son atout résidant dans la capacité d'interpréter les signaux DND, ce qui a permis de fixer un signal seuil enclenchant l'arrêt d'urgence du réacteur pour une rupture jugée dangereuse. Néanmoins, l'enclenchement de l'arrêt d'urgence du réacteur peut compromettre sa disponibilité et peut avoir des conséquences financières lourdes pour l'exploitant.
- Un second module, basé sur une spectrométrie gamma, se caractérise par la détection d'une rupture dans ses premières phases (fissure acceptable) signée par le relâchement de produits de fission gazeux (xénon, krypton). Ce moyen d'inspection précoce peut prévenir une menace vis-à-vis de la sûreté, par exemple en signalant à l'exploitant l'existence d'une fissure et en lui permettant de décharger un assemblage défaillant lors d'un prochain arrêt de tranche planifié. Ainsi, il optimise la disponibilité de sa tranche sans prise de risque pour la sûreté.

La spectrométrie gamma a été déployée sur Phénix à titre expérimental. Compte tenu du phénomène de diffusion Compton propre aux rayonnements gamma, la mesure des produits de fission a été compromise par la présence d'un bruit de fond engendré par les produits d'activation du sodium caloporteur et de l'argon de couverture, à savoir le  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{20}\text{F}$ ,  $^{23}\text{Ne}$ , et  $^{41}\text{Ar}$ . Un processus de dégazage a donc été rendu nécessaire pour s'affranchir des produits d'activation non gazeux. Toutefois, et malgré la mise en place du dégazage, des lignes à retard de 15 minutes ont été nécessaires à la désactivation du  $^{23}\text{Ne}$  possédant une période de 38 secondes. Ces lignes à retard induisent un temps de réponse global d'au moins 15 minutes, détruisant de manière collatérale les signaux utiles des produits de fission de vie courte dont la plus-value est cruciale au diagnostic de sûreté basé sur l'analyse de la courbe  $\log(R/B)$ . Une dernière source de bruit,  $^{41}\text{Ar}$ , présentant une période de 110 minutes, ne peut pas être filtré ainsi. En effet, ce dernier ne perd que 7% de son activité dans ces lignes à retard.

L'objectif des présents travaux de recherche a été d'améliorer la spectrométrie gamma historique par la mise en œuvre d'un système à suppression Compton. La réduction des limites de détection ainsi atteinte par le système proposé, améliore le temps de réponse et enrichie l'information isotopique disponible (produits de fission de vie courte). L'exploitant est renseigné plus précocement de ce qui se passe dans le cœur du réacteur et avec un niveau d'information plus précis. Bien en amont des signaux DND, il peut désormais statuer avec plus de confiance sur l'aggravation d'une fissure acceptable avant qu'elle n'atteigne la phase de rupture étroite indésirable. Pour aboutir à cette conclusion, plusieurs démarches ont été mise en œuvre dans le cadre de ces travaux afin d'évaluer la faisabilité d'une spectrométrie gamma bas bruit rapide et précoce pour la détection des ruptures de gaine d'un RNR-Na.

Dans la première phase des travaux, nous nous sommes attachés à caractériser le terme source des produits de fission dans le volume de détection. Après avoir présenté les différents produits de fission créés à la suite d'une réaction de fission, nous avons motivé le choix de suivre particulièrement les gaz rares de fission (xénon, krypton), lesquels sont relâchés dans les premiers stades d'une rupture et peuvent constituer un indicateur précoce d'une rupture type fissure étroite acceptable. Une étude bibliographique préalable, à partir de travaux antérieurs, a été l'occasion de comprendre les principaux mécanismes de migration des produits de fission dans une matrice combustible, tels que le recul et la diffusion. Une comparaison des travaux de la littérature nous a ensuite permis de dégager les expressions des coefficients de diffusion du xénon et du krypton représentatifs du comportement d'un combustible sous irradiation. Ces coefficients ont été nécessaires à l'implémentation du modèle correspondant au terme source des produits de fission gazeux.

Dans la deuxième partie, nous avons développé un modèle multiphysique décrivant la plupart des phénomènes physiques à l'origine des signaux de spectrométrie gamma. Ce modèle, visant à estimer l'activité attendue des produits de fission dans le volume de détection, comprend d'abord leur création en tant que produits de fission par un calcul d'évolution DARWIN associé à un code Monte Carlo TRIPOLI-4 dans un cœur RNR-Na type CFV3. En absence de ladite rupture, l'inventaire du mélange gazeux a été calculé par l'implémentation des équations différentielles de Bateman en fonction de la durée de fonctionnement du réacteur à puissance nominale. En cas de rupture, la perte d'étanchéité du système a été ensuite simulée *via* la modélisation d'une fuite de type circulaire de diamètre  $d_f$ . La dépressurisation de l'aiguille a été également simulée suivant des cinétiques de relâchement qui dépendent de la taille de la rupture et de la pression exercée de part et d'autre de la gaine. Sur la base de la fraction relâchée, ce modèle implémente depuis le lieu de la rupture : le transport des gaz dans le sodium suivant un débit  $Q_{Na}$ , le dégazage suivant un débit  $Q_{Ar}$ , puis l'arrivée au volume de mesure suivant un temps de transit  $t_r$ . Ainsi, des activités attendues  $A_{PF}$  ont été estimées pour chaque produits de fission d'intérêt. Les résultats de ce modèle montrent des tendances cohérentes avec le retour d'expériences des ruptures RNR-Na avec une phase bouffée, observée expérimentalement, laquelle peut être décelée par un prélèvement d'un mélange de tous les assemblages par le mode de prospection globale, et une phase de relâchement continue qui pourrait signer une mise en contact entre le sodium et le combustible sur un prélèvement de l'assemblage défectueux et par détection des périodes courtes ( $^{137}\text{Xe}$  et  $^{89}\text{Kr}$ ).

La troisième phase de ces travaux a concerné l'étude numérique par la méthode Monte Carlo, la validation expérimentale et l'optimisation d'un système à suppression Compton. Après avoir motivé le choix d'un détecteur de garde de type BGO pour équiper le spectromètre principal de haute résolution HPGe, un facteur de mérite a été introduit dans le but d'évaluer le niveau de suppression Compton atteint par de tels systèmes. Le travail de cette étude a abouti à la mise au point d'un schéma de calcul dédié au post-traitement de l'historique individuel des particules transportées par la méthode Monte Carlo MCNP6.1 et à la gestion des événements coïncidents dans les deux détecteurs. Le modèle numérique du système à suppression Compton développé a ensuite été validé expérimentalement au moyen d'une série de mesures réalisées au laboratoire LCAE (Laboratoire des Capteurs et Architectures Electroniques), mettant en œuvre des sources étalons de  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{60}\text{Co}$ , représentatives du bruit de fond attendu, dans des configurations variées. Les étapes de cette optimisation comprennent : le dimensionnement des diamètres interne et externe du détecteur de garde annulaire, celui de la fenêtre d'entrée de BGO et celui du diamètre de l'ouverture de collimation au centre de cette fenêtre. Cette étude nous a permis de dégager les grandes lignes de conception d'un système à suppression Compton pour équiper le poste de spectrométrie gamma RNR-Na, d'estimer le facteur de suppression permis par de tels systèmes (un facteur 4), de valider expérimentalement le modèle numérique et de mettre en place un schéma de calcul valide pour le traitement des anti-coïncidences. L'ensemble des travaux réalisés dans cette partie a fait l'objet de deux demandes de dépôt de brevet sur les systèmes de spectrométrie bas bruit Compton, procédé de spectrométrie et produit-programme d'ordinateur associés.

Dans la quatrième partie de ces travaux, nous avons simulé la mesure de spectrométrie gamma bas bruit de fond, en vue d'estimer les limites de détection associées à la détection des produits de fission recherchés. L'estimation d'une telle limite de détection passe par la simulation des signaux associés au bruit de fond de la mesure. Dans cet objectif, nous avons mis en place une méthodologie de calcul intégrant plusieurs phénomènes rencontrés dans une mesure de spectrométrie gamma SSC afin que la modélisation finale soit la plus représentative d'une mesure réelle. Ainsi, nous avons pris en compte, dans la construction des signaux des produits d'activation, les phénomènes suivants : la contribution de la composante bêta au signal total, l'élargissement gaussien des détecteurs, l'effet d'empilement et les coïncidences fortuites. Ce travail a abouti à l'estimation des activités minimales détectables  $AMD_{PF,nonfiltré}$  ne considérant pas le filtrage en anti-coïncidence et des  $AMD_{PF,filtré}$  considérant le filtrage *via* le schéma de calcul préalablement validé. Les  $AMD_{PF,nonfiltré}$  et  $AMD_{PF,filtré}$  ont été alors calculées pour différents temps de transit  $t_r$  (5 s, 10 s, 30 s, 60 s, 300 s, 600 s, 900 s et 1200 s) et différents temps de mesure  $t$  (60 s, 600 s, 3600 s). Pour une configuration de mesure suffisamment rapide ( $t_r = 60\text{s}$ ,  $t = 60\text{s}$ ), les  $AMD_{PF,nonfiltré}$  varient de quelques dizaines de  $\text{GBq}\cdot\text{m}^{-3}$  à quelques centaines de  $\text{GBq}\cdot\text{m}^{-3}$ . La conclusion de cette étude montre un gain sur la réduction de l'activité minimale détectable jusqu'à un facteur 4 pour certaines raies d'intérêt (Cas  $^{133}\text{Xe}$  : 81 keV,  $t_r = 60\text{s}$ ,  $t = 60\text{s}$ ).

La conclusion sur ces travaux de recherche fut l'occasion de statuer sur la mesurabilité de l'ensemble des produits de fission. Pour cela, un seuil de détectabilité a été introduit comme le



rapport entre les activités attendues  $A_{PF}$  et les activités minimales détectables  $AMD_{PF,filtré}$  et  $AMD_{PF,nonfiltré}$ . Ainsi, nous avons formulé les conclusions suivantes :

- Sans filtrage SSC, nous avons démontré la mesurabilité de tous les isotopes d'intérêt, excepté le  $^{89}\text{Kr}$ , par le mode de prospection globale avec un temps de transit d'une minute et un temps de mesure d'une minute. Ce résultat est en accord, si l'on considère un temps de transit de 15 minutes, avec le retour d'expérience obtenu sur la centrale Phénix, lequel ne fait pas mention de la détection du  $^{89}\text{Kr}$  qui se trouve être pénalisé dans les lignes à retard.
- Le filtrage SSC, quant à lui, permet la mesure du  $^{89}\text{Kr}$  en mode de prospection globale. Nous pouvons également remarquer, que l'implémentation du filtrage SSC améliore légèrement le seuil de détectabilité des autres produits de fission de vie moyenne et longue pour un temps de transit donné.

Dans ce mode de prospection globale, la mesurabilité d'un ou plusieurs produits de fission suffit pour signaler une rupture de gaine. Néanmoins, grâce à la mise en place d'un système à suppression Compton bien dimensionné, nous avons amélioré la réponse de la spectrométrie gamma en passant d'un délai de 15 minutes (configuration historique) à un délai de seulement 1 minute.

Dans le cas où une rupture de gaine est décelée par ce mode de prospection globale, l'exploitant procédera alors à un scan de l'assemblage défectueux puis enclenchera une prospection ciblée. Ce mode de surveillance ciblée est particulièrement intéressant pour l'exploitant. Il permet de suivre l'évolution d'une rupture et de révéler une éventuelle mise en contact entre le combustible et le sodium par la détection d'isotopes de périodes courtes, tels que le  $^{137}\text{Xe}$  et  $^{89}\text{Kr}$ . Grâce aux travaux de recherche réalisés dans le cadre de la présente thèse de doctorat, nous avons démontré la mesurabilité théorique du  $^{89}\text{Kr}$ , permise seulement par l'approche de filtrage SSC, avec un temps de réponse très précoce égal à 2 minutes ( $t_r = 60\text{s}$ ,  $t = 60\text{s}$ ).

Cette preuve de mesurabilité théorique du  $^{89}\text{Kr}$  constitue un argument clé de la puissance du diagnostic que peut offrir un système de spectrométrie gamma bas bruit Compton dans la surveillance des ruptures de gaine d'un RNR-Na. La rupture technologique résultante de la présente thèse est en mesure d'avoir un impact significatif sur la stratégie de sûreté des réacteurs de quatrième génération type RNR-Na. Fort de ces résultats prometteurs, le développement du poste de spectromètre bas bruit Compton conçu dans cette thèse et sa validation sur un prototype RNR-Na en exploitation est une perspective qui doit alerter la communauté des scientifiques travaillant sur les RNR-Na.

A la suite de ces travaux de thèse, deux perspectives sont ouvertes :

- Des essais expérimentaux d'une spectrométrie gamma bas bruit Compton sont prévus sur une boucle expérimentale sodium en collaboration avec le JAEA (*Japan Atomic Energy Agency*).

- Un travail de thèse a été initié afin d'affiner la modélisation du terme source des produits de fission développé, notamment par la compréhension et la modélisation de tous les phénomènes à l'origine du comportement des produits de fission dans un combustible RNR-Na se basant sur des outils multiphysiques, tels que Comsol et Modelica. Ce travail intégrera également la modélisation de l'évolution temporelle du défaut d'étanchéité ainsi que l'étude de d'autres scénarii de ruptures. Dans la continuité de ces travaux, une attention sera accordée à la compréhension et la modélisation des aspects hydrauliques du système de prélèvement et de transport des produits de fission vers le volume de mesure. Cette thèse est intitulée : Etude multiphysique des mesures de contamination dans les réacteurs à neutrons rapides.



# ANNEXE A

EXTRAIT D'UN FICHIER PTRAC (MCNP6.1)

Heading										
Event	Coordinates of event (x, y, z)			Direction of emission (u, v, w)			Energy of particle	Weight of particle	Cell of interaction	Interaction
1	4000	1	40	2	1	0	0.66166E+00	0.10000E+01	0.00000E+00	0.00000E+00
2	4000	2	2000	-2	50	8	0.66166E+00	0.10000E+01	0.92606E-01	0.92606E-01
3	4000	2	2000	-1	50	8	0.57689E+00	0.10000E+01	0.93855E-01	0.93855E-01
4	4000	2	2000	-1	50	8	0.27272E+00	0.10000E+01	0.97292E-01	0.97292E-01
5	4000	2	2000	-1	50	8	0.21156E+00	0.10000E+01	0.98463E-01	0.98463E-01
6	4000	3	3000	-3	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98589E-01	0.98589E-01
7	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98635E-01	0.98635E-01
8	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
9	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
10	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
11	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
12	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
13	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
14	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
15	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
16	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
17	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
18	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
19	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
20	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
21	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
22	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
23	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
24	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
25	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
26	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
27	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
28	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
29	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
30	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
31	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
32	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
33	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
34	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
35	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
36	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
37	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
38	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
39	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01
40	4000	3	3000	-2	50	8	0.73039E-01	0.10000E+01	0.98664E-01	0.98664E-01



## ANNEXE B

### ACTIVITES MINIMALES DETECTABLES

$t_r = 5 s, t = 60 s$					
Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$G$
<sup>133</sup> Xe	5,24 j	81	4,27E+11	1,03E+11	4,14
<sup>133m</sup> Xe	2,2 j	233,18	1,03E+12	4,52E+11	2,29
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	1,21E+11	4,96E+10	2,44
<sup>135m</sup> Xe	15,3 m	526,56	5,24E+10	3,19E+10	1,64
<sup>137</sup> Xe	3,82 m	455,5	6,96E+11	5,56E+11	1,25
<sup>138</sup> Xe	14,1 m	258,411	3,48E+11	1,46E+11	2,38
		396,5	3,18E+11	2,10E+11	1,51
		434,562	8,10E+11	6,48E+11	1,25
		1768,26	6,57E+10	6,33E+10	1,04
		2015,82	7,51E+10	7,48E+10	1,01
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,58	2,21E+11	1,53E+11	1,45
		2554,8	7,36E+10	6,05E+10	1,22
		845,4	1,03E+11	5,46E+10	1,88
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	7,75E+10	7,75E+10	1,00
		196,3	2,95E+11	1,45E+11	2,03
		195,8	2,95E+11	1,45E+11	2,03
		834,8	1,57E+11	8,49E+10	1,85
		1529,8	1,04E+11	6,93E+10	1,50
<sup>89</sup> Kr	3,15 m	220,9	5,21E+11	2,45E+11	2,12
		586	2,33E+11	4,53E+10	5,14
		904,3	2,62E+11	7,69E+10	3,41
		1472,8	2,74E+11	8,28E+10	3,31
		497,4	2,21E+11	1,10E+11	2,01
<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2	1,19E+11	5,19E+10	2,30
$t_r = 10 s, t = 60 s$					
Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$G$
<sup>133</sup> Xe	5,24 j	81	4,08E+11	9,88E+10	4,12
<sup>133m</sup> Xe	2,2 j	233,18	9,88E+11	4,32E+11	2,29
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	1,16E+11	4,75E+10	2,43
<sup>135m</sup> Xe	15,3 m	526,56	5,03E+10	3,08E+10	1,63
<sup>137</sup> Xe	3,82 m	455,5	6,65E+11	5,32E+11	1,25
<sup>138</sup> Xe	14,1 m	258,411	3,33E+11	1,40E+11	2,38
		396,5	3,04E+11	2,01E+11	1,51
		434,562	7,74E+11	6,19E+11	1,25
		1768,26	6,56E+10	6,33E+10	1,04
		2015,82	7,50E+10	7,48E+10	1,00

<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,58	2,12E+11	1,46E+11	1,45
		2554,8	7,30E+10	6,05E+10	1,21
		845,4	9,89E+10	5,30E+10	1,86
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	7,75E+10	7,75E+10	1,00
		196,3	2,82E+11	1,39E+11	2,03
		195,8	2,82E+11	1,39E+11	2,03
		834,8	1,51E+11	8,23E+10	1,83
		1529,8	1,01E+11	6,84E+10	1,48
<sup>89</sup> Kr	3,15 m	220,9	4,98E+11	2,35E+11	2,12
		586	2,24E+11	4,47E+10	5,00
		904,3	2,52E+11	7,57E+10	3,33
		1472,8	2,65E+11	8,27E+10	3,21
		497,4	2,12E+11	1,06E+11	2,00
<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2	1,14E+11	4,97E+10	2,29

$t_r = 30 \text{ s}, t = 60 \text{ s}$					
Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$G$
<sup>133</sup> Xe	5,24 j	81	3,40E+11	8,35E+10	4,07
<sup>133m</sup> Xe	2,2 j	233,18	8,24E+11	3,63E+11	2,27
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	9,64E+10	4,00E+10	2,41
<sup>135m</sup> Xe	15,3 m	526,56	4,30E+10	2,68E+10	1,61
<sup>137</sup> Xe	3,82 m	455,5	5,55E+11	4,44E+11	1,25
<sup>138</sup> Xe	14,1 m	258,411	2,78E+11	1,18E+11	2,36
		396,5	2,55E+11	1,70E+11	1,50
		434,562	6,45E+11	5,17E+11	1,25
		1768,26	6,52E+10	6,33E+10	1,03
		2015,82	7,47E+10	7,46E+10	1,00
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,58	1,77E+11	1,23E+11	1,44
		2554,8	7,08E+10	6,05E+10	1,17
		845,4	8,54E+10	4,73E+10	1,80
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	7,75E+10	7,75E+10	1,00
		196,3	2,35E+11	1,17E+11	2,02
		195,8	2,35E+11	1,16E+11	2,02
		834,8	1,30E+11	7,30E+10	1,78
		1529,8	9,24E+10	6,49E+10	1,42
<sup>89</sup> Kr	3,15 m	220,9	4,15E+11	1,97E+11	2,11
		586	1,91E+11	4,27E+10	4,48
		904,3	2,18E+11	7,14E+10	3,06
		1472,8	2,34E+11	8,25E+10	2,84
		497,4	1,81E+11	9,27E+10	1,95
<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2	9,50E+10	4,17E+10	2,28

$t_r = 60 \text{ s}, t = 60 \text{ s}$

Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$G$
<sup>133</sup> Xe	5,24 j	81	2,59E+11	6,53E+10	3,97
<sup>133m</sup> Xe	2,2 j	233,18	6,29E+11	2,80E+11	2,24
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	7,37E+10	3,09E+10	2,38
<sup>135m</sup> Xe	15,3 m	526,56	3,43E+10	2,20E+10	1,56
<sup>137</sup> Xe	3,82 m	455,5	4,24E+11	3,40E+11	1,25
<sup>138</sup> Xe	14,1 m	258,411	2,12E+11	9,10E+10	2,33
		396,5	1,96E+11	1,31E+11	1,49
		434,562	4,91E+11	3,94E+11	1,25
		1768,26	6,48E+10	6,33E+10	1,02
		2015,82	7,44E+10	7,43E+10	1,01
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,58	1,36E+11	9,51E+10	1,43
		2554,8	6,83E+10	6,05E+10	1,13
		845,4	6,93E+10	4,05E+10	1,71
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	7,75E+10	7,75E+10	1,00
		196,3	1,79E+11	8,96E+10	2,00
		195,8	1,79E+11	8,96E+10	2,00
		834,8	1,05E+11	6,19E+10	1,70
		1529,8	8,15E+10	6,08E+10	1,34
<sup>89</sup> Kr	3,15 m	220,9	3,17E+11	1,52E+11	2,09
		586	1,53E+11	4,04E+10	3,78
		904,3	1,77E+11	6,62E+10	2,68
		1472,8	1,97E+11	8,23E+10	2,39
		497,4	1,43E+11	7,67E+10	1,87
<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2	7,24E+10	3,21E+10	2,26

$t_r = 300 \text{ s}, t = 60 \text{ s}$					
Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$G$
<sup>133</sup> Xe	5,24 j	81	3,54E+10	1,46E+10	2,42
<sup>133m</sup> Xe	2,2 j	233,18	8,88E+10	5,14E+10	1,73
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	1,05E+10	5,94E+09	1,77
<sup>135m</sup> Xe	15,3 m	526,56	1,01E+10	8,82E+09	1,15
<sup>137</sup> Xe	3,82 m	455,5	5,96E+10	5,06E+10	1,18
<sup>138</sup> Xe	14,1 m	258,411	3,04E+10	1,75E+10	1,74
		396,5	3,30E+10	2,61E+10	1,27
		434,562	6,59E+10	5,55E+10	1,19
		1768,26	6,35E+10	6,33E+10	1,00
		2015,82	7,36E+10	7,36E+10	1,00
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,58	2,23E+10	1,79E+10	1,25
		2554,8	6,14E+10	6,05E+10	1,01
		845,4	2,48E+10	2,17E+10	1,14
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	7,75E+10	7,75E+10	1,00



		196,3	2,46E+10	1,50E+10	1,64
		195,8	2,46E+10	1,49E+10	1,64
		834,8	3,58E+10	3,12E+10	1,15
		1529,8	5,15E+10	4,93E+10	1,05
<sup>89</sup> Kr	3,15 m	220,9	4,41E+10	2,65E+10	1,67
		586	4,59E+10	3,38E+10	1,36
		904,3	6,38E+10	5,19E+10	1,23
		1472,8	9,40E+10	8,17E+10	1,15
		497,4	3,94E+10	3,23E+10	1,22
<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2	9,91E+09	5,59E+09	1,77

$t_r = 600 \text{ s}, t = 60 \text{ s}$					
Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$G$
<sup>133</sup> Xe	5,24 j	81	1,02E+10	8,93E+09	1,14
<sup>133m</sup> Xe	2,2 j	233,18	2,79E+10	2,56E+10	1,09
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	3,40E+09	3,12E+09	1,09
<sup>135m</sup> Xe	15,3 m	526,56	7,42E+09	7,34E+09	1,01
<sup>137</sup> Xe	3,82 m	455,5	1,85E+10	1,80E+10	1,03
<sup>138</sup> Xe	14,1 m	258,411	9,98E+09	9,18E+09	1,09
		396,5	1,46E+10	1,42E+10	1,03
		434,562	1,80E+10	1,73E+10	1,04
		1768,26	6,33E+10	6,33E+10	1,00
		2015,82	7,35E+10	7,35E+10	1,00
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,58	9,51E+09	9,24E+09	1,03
		2554,8	6,06E+10	6,05E+10	1,00
		845,4	1,98E+10	1,95E+10	1,01
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	7,75E+10	7,75E+10	1,00
		196,3	7,14E+09	6,54E+09	1,09
		195,8	7,12E+09	6,53E+09	1,09
		834,8	2,81E+10	2,78E+10	1,01
		1529,8	4,81E+10	4,80E+10	1,00
<sup>89</sup> Kr	3,15 m	220,9	1,34E+10	1,24E+10	1,09
		586	3,39E+10	3,31E+10	1,02
		904,3	5,11E+10	5,03E+10	1,01
		1472,8	8,24E+10	8,16E+10	1,01
		497,4	2,78E+10	2,73E+10	1,02
<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2	2,87E+09	2,60E+09	1,10

$t_r = 900 \text{ s}, t = 60 \text{ s}$					
Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$G$
<sup>133</sup> Xe	5,24 j	81	8,70E+09	8,59E+09	1,01
<sup>133m</sup> Xe	2,2 j	233,18	2,43E+10	2,41E+10	1,01

<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	2,97E+09	2,95E+09	1,01
<sup>135m</sup> Xe	15,3 m	526,56	7,29E+09	7,26E+09	1,00
<sup>137</sup> Xe	3,82 m	455,5	1,60E+10	1,60E+10	1,01
<sup>138</sup> Xe	14,1 m	258,411	8,75E+09	8,68E+09	1,01
		396,5	1,35E+10	1,35E+10	1,00
		434,562	1,51E+10	1,50E+10	1,01
		1768,26	6,33E+10	6,33E+10	1,00
		2015,82	7,35E+10	7,35E+10	1,00
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,58	8,75E+09	8,71E+09	1,00
		2554,8	6,05E+10	6,05E+10	1,00
		845,4	1,95E+10	1,94E+10	1,00
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	7,75E+10	7,75E+10	1,00
		196,3	6,08E+09	6,03E+09	1,01
		195,8	6,07E+09	6,02E+09	1,01
		834,8	2,77E+10	2,76E+10	1,00
		1529,8	4,79E+10	4,79E+10	1,00
<sup>89</sup> Kr	3,15 m	220,9	1,16E+10	1,15E+10	1,01
		586	3,33E+10	3,31E+10	1,00
		904,3	5,05E+10	5,02E+10	1,00
		1472,8	8,17E+10	8,16E+10	1,00
		497,4	2,72E+10	2,71E+10	1,00
<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2	2,44E+09	2,42E+09	1,01

$t_r = 1200 s, t = 60 s$					
Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$G$
<sup>133</sup> Xe	5,24 j	81	8,65E+09	8,58E+09	1,01
<sup>133m</sup> Xe	2,2 j	233,18	2,42E+10	2,40E+10	1,01
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	2,96E+09	2,94E+09	1,01
<sup>135m</sup> Xe	15,3 m	526,56	7,28E+09	7,26E+09	1,00
<sup>137</sup> Xe	3,82 m	455,5	1,59E+10	1,59E+10	1,00
<sup>138</sup> Xe	14,1 m	258,411	8,71E+09	8,67E+09	1,01
		396,5	1,35E+10	1,35E+10	1,00
		434,562	1,49E+10	1,49E+10	1,00
		1768,26	6,33E+10	6,33E+10	1,00
		2015,82	7,35E+10	7,35E+10	1,00
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,58	8,73E+09	8,69E+09	1,00
		2554,8	6,05E+10	6,05E+10	1,00
		845,4	1,95E+10	1,94E+10	1,00
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	7,75E+10	7,75E+10	1,00
		196,3	6,05E+09	6,02E+09	1,01
		195,8	6,04E+09	6,01E+09	1,01
		834,8	2,77E+10	2,76E+10	1,00
		1529,8	4,79E+10	4,79E+10	1,00

<sup>89</sup> Kr	3,15 m	220,9	1,15E+10	1,15E+10	1,01
		586	3,33E+10	3,31E+10	1,00
		904,3	5,05E+10	5,02E+10	1,00
		1472,8	8,16E+10	8,16E+10	1,00
		497,4	2,72E+10	2,70E+10	1,00
<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2	2,43E+09	2,42E+09	1,01

$t_r = 5 s, t = 600 s$					
Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$G$
<sup>133</sup> Xe	5,24 j	81	1,33E+11	3,08E+10	4,32
<sup>133m</sup> Xe	2,2 j	233,18	3,22E+11	1,38E+11	2,34
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	3,76E+10	1,51E+10	2,50
<sup>135m</sup> Xe	15,3 m	526,56	1,50E+10	8,52E+09	1,76
<sup>137</sup> Xe	3,82 m	455,5	2,17E+11	1,72E+11	1,26
<sup>138</sup> Xe	14,1 m	258,411	1,08E+11	4,43E+10	2,44
		396,5	9,77E+10	6,36E+10	1,54
		434,562	2,53E+11	2,02E+11	1,25
		1768,26	7,09E+09	6,33E+09	1,12
		2015,82	7,84E+09	7,78E+09	1,01
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,58	6,81E+10	4,64E+10	1,47
		2554,8	1,02E+10	6,05E+09	1,68
		845,4	2,83E+10	1,31E+10	2,16
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	7,75E+09	7,75E+09	1,00
		196,3	9,21E+10	4,47E+10	2,06
		195,8	9,20E+10	4,47E+10	2,06
		834,8	4,36E+10	2,09E+10	2,09
		1529,8	2,25E+10	1,16E+10	1,95
<sup>89</sup> Kr	3,15 m	220,9	1,62E+11	7,51E+10	2,16
		586	6,65E+10	7,17E+09	9,27
		904,3	7,20E+10	1,35E+10	5,34
		1472,8	6,90E+10	8,52E+09	8,09
		497,4	6,41E+10	2,89E+10	2,21
<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2	3,72E+10	1,59E+10	2,34

$t_r = 10 s, t = 600 s$					
Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$G$
<sup>133</sup> Xe	5,24 j	81	1,27E+11	2,94E+10	4,32
<sup>133m</sup> Xe	2,2 j	233,18	3,07E+11	1,31E+11	2,34
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	3,59E+10	1,44E+10	2,49
<sup>135m</sup> Xe	15,3 m	526,56	1,43E+10	8,17E+09	1,76
<sup>137</sup> Xe	3,82 m	455,5	2,07E+11	1,65E+11	1,26
<sup>138</sup> Xe	14,1 m	258,411	1,03E+11	4,23E+10	2,44

		396,5	9,34E+10	6,08E+10	1,54
		434,562	2,41E+11	1,93E+11	1,25
		1768,26	7,06E+09	6,33E+09	1,12
		2015,82	7,82E+09	7,76E+09	1,01
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,58	6,50E+10	4,44E+10	1,47
		2554,8	9,99E+09	6,05E+09	1,65
		845,4	2,71E+10	1,26E+10	2,15
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	7,75E+09	7,75E+09	1,00
		196,3	8,79E+10	4,27E+10	2,06
		195,8	8,78E+10	4,27E+10	2,06
		834,8	4,18E+10	2,01E+10	2,08
		1529,8	2,17E+10	1,13E+10	1,93
<sup>89</sup> Kr	3,15 m	220,9	1,55E+11	7,18E+10	2,16
		586	6,36E+10	6,99E+09	9,10
		904,3	6,90E+10	1,31E+10	5,27
		1472,8	6,62E+10	8,51E+09	7,78
		497,4	6,13E+10	2,77E+10	2,21
<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2	3,55E+10	1,52E+10	2,34

$t_r = 30 s, t = 600 s$					
Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	G
<sup>133</sup> Xe	5,24 j	81	1,06E+11	2,46E+10	4,30
<sup>133m</sup> Xe	2,2 j	233,18	2,55E+11	1,10E+11	2,33
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	2,99E+10	1,20E+10	2,49
<sup>135m</sup> Xe	15,3 m	526,56	1,20E+10	6,90E+09	1,74
<sup>137</sup> Xe	3,82 m	455,5	1,72E+11	1,37E+11	1,26
<sup>138</sup> Xe	14,1 m	258,411	8,59E+10	3,53E+10	2,43
		396,5	7,77E+10	5,07E+10	1,53
		434,562	2,01E+11	1,60E+11	1,25
		1768,26	6,94E+09	6,33E+09	1,10
		2015,82	7,74E+09	7,69E+09	1,01
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,58	5,41E+10	3,70E+10	1,46
		2554,8	9,32E+09	6,05E+09	1,54
		845,4	2,28E+10	1,08E+10	2,12
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	7,75E+09	7,75E+09	1,00
		196,3	7,31E+10	3,56E+10	2,06
		195,8	7,30E+10	3,55E+10	2,06
		834,8	3,52E+10	1,71E+10	2,05
		1529,8	1,89E+10	1,02E+10	1,86
<sup>89</sup> Kr	3,15 m	220,9	1,29E+11	5,98E+10	2,15
		586	5,34E+10	6,37E+09	8,38
		904,3	5,81E+10	1,17E+10	4,96
		1472,8	5,63E+10	8,45E+09	6,67

		497,4	5,13E+10	2,35E+10	2,19
<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2	2,95E+10	1,27E+10	2,33

$t_r = 60 s, t = 600 s$					
Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$G$
<sup>133</sup> Xe	5,24 j	81	8,01E+10	1,88E+10	4,26
<sup>133m</sup> Xe	2,2 j	233,18	1,94E+11	8,35E+10	2,32
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	2,27E+10	9,15E+09	2,48
<sup>135m</sup> Xe	15,3 m	526,56	9,28E+09	5,40E+09	1,72
<sup>137</sup> Xe	3,82 m	455,5	1,31E+11	1,04E+11	1,26
<sup>138</sup> Xe	14,1 m	258,411	6,52E+10	2,69E+10	2,42
		396,5	5,91E+10	3,87E+10	1,53
		434,562	1,52E+11	1,22E+11	1,25
		1768,26	6,79E+09	6,33E+09	1,07
		2015,82	7,64E+09	7,61E+09	1,01
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,58	4,12E+10	2,82E+10	1,46
		2554,8	8,52E+09	6,05E+09	1,41
		845,4	1,77E+10	8,62E+09	2,06
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	7,75E+09	7,75E+09	1,00
		196,3	5,54E+10	2,70E+10	2,05
		195,8	5,54E+10	2,70E+10	2,05
		834,8	2,73E+10	1,36E+10	2,00
		1529,8	1,54E+10	8,85E+09	1,74
<sup>89</sup> Kr	3,15 m	220,9	9,77E+10	4,55E+10	2,15
		586	4,12E+10	5,62E+09	7,32
		904,3	4,52E+10	1,01E+10	4,48
		1472,8	4,46E+10	8,38E+09	5,33
		497,4	3,95E+10	1,84E+10	2,14
<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2	2,24E+10	9,63E+09	2,32

$t_r = 300 s, t = 600 s$					
Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$G$
<sup>133</sup> Xe	5,24 j	81	9,35E+09	2,78E+09	3,37
<sup>133m</sup> Xe	2,2 j	233,18	2,29E+10	1,11E+10	2,07
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	2,69E+09	1,24E+09	2,17
<sup>135m</sup> Xe	15,3 m	526,56	1,64E+09	1,22E+09	1,34
<sup>137</sup> Xe	3,82 m	455,5	1,54E+10	1,26E+10	1,23
<sup>138</sup> Xe	14,1 m	258,411	7,76E+09	3,66E+09	2,12
		396,5	7,54E+09	5,34E+09	1,41
		434,562	1,76E+10	1,44E+10	1,23
		1768,26	6,38E+09	6,33E+09	1,01
		2015,82	7,38E+09	7,38E+09	1,00

<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,58	5,19E+09	3,79E+09	1,37
		2554,8	6,32E+09	6,05E+09	1,04
		845,4	3,63E+09	2,66E+09	1,37
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	7,75E+09	7,75E+09	1,00
		196,3	6,48E+09	3,43E+09	1,89
		195,8	6,47E+09	3,43E+09	1,89
		834,8	5,38E+09	3,92E+09	1,37
		1529,8	5,93E+09	5,23E+09	1,13
<sup>89</sup> Kr	3,15 m	220,9	1,15E+10	5,90E+09	1,95
		586	7,36E+09	3,55E+09	2,07
		904,3	9,32E+09	5,56E+09	1,68
		1472,8	1,21E+10	8,18E+09	1,47
		497,4	6,64E+09	4,38E+09	1,52
<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2	2,61E+09	1,25E+09	2,10

$t_r = 900 \text{ s}, t = 600 \text{ s}$					
Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$G$
<sup>133</sup> Xe	5,24 j	81	8,99E+08	8,66E+08	1,04
<sup>133m</sup> Xe	2,2 j	233,18	2,50E+09	2,43E+09	1,03
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	3,06E+08	2,98E+08	1,03
<sup>135m</sup> Xe	15,3 m	526,56	7,39E+08	7,30E+08	1,01
<sup>137</sup> Xe	3,82 m	455,5	1,65E+09	1,62E+09	1,02
<sup>138</sup> Xe	14,1 m	258,411	8,99E+08	8,77E+08	1,03
		396,5	1,38E+09	1,36E+09	1,02
		434,562	1,55E+09	1,53E+09	1,02
		1768,26	6,33E+09	6,33E+09	1,00
		2015,82	7,35E+09	7,35E+09	1,00
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,58	8,92E+08	8,78E+08	1,02
		2554,8	6,05E+09	6,05E+09	1,00
		845,4	1,98E+09	1,95E+09	1,01
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	7,75E+09	7,75E+09	1,00
		196,3	6,28E+08	6,11E+08	1,03
		195,8	6,26E+08	6,10E+08	1,03
		834,8	2,81E+09	2,77E+09	1,01
		1529,8	4,79E+09	4,79E+09	1,00
<sup>89</sup> Kr	3,15 m	220,9	1,19E+09	1,16E+09	1,03
		586	3,37E+09	3,33E+09	1,01
		904,3	5,12E+09	5,04E+09	1,01
		1472,8	8,18E+09	8,16E+09	1,00
		497,4	2,76E+09	2,72E+09	1,01
<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2	2,52E+08	2,45E+08	1,03

$t_r = 1200 \text{ s}, t = 600 \text{ s}$					
---	--	--	--	--	--

Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$G$
<sup>133</sup> Xe	5,24 j	81	8,84E+08	8,63E+08	1,02
<sup>133m</sup> Xe	2,2 j	233,18	2,46E+09	2,42E+09	1,02
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	3,02E+08	2,97E+08	1,02
<sup>135m</sup> Xe	15,3 m	526,56	7,38E+08	7,30E+08	1,01
<sup>137</sup> Xe	3,82 m	455,5	1,62E+09	1,60E+09	1,01
<sup>138</sup> Xe	14,1 m	258,411	8,88E+08	8,73E+08	1,02
		396,5	1,37E+09	1,35E+09	1,01
		434,562	1,52E+09	1,50E+09	1,01
		1768,26	6,33E+09	6,33E+09	1,00
		2015,82	7,35E+09	7,35E+09	1,00
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,58	8,86E+08	8,73E+08	1,01
		2554,8	6,05E+09	6,05E+09	1,00
		845,4	1,98E+09	1,95E+09	1,02
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	7,75E+09	7,75E+09	1,00
		196,3	6,17E+08	6,06E+08	1,02
		195,8	6,15E+08	6,05E+08	1,02
		834,8	2,81E+09	2,77E+09	1,02
		1529,8	4,79E+09	4,79E+09	1,00
<sup>89</sup> Kr	3,15 m	220,9	1,18E+09	1,16E+09	1,02
		586	3,37E+09	3,32E+09	1,01
		904,3	5,11E+09	5,04E+09	1,01
		1472,8	8,16E+09	8,16E+09	1,00
		497,4	2,76E+09	2,72E+09	1,01
<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2	2,48E+08	2,43E+08	1,02

$t_r = 5 s, t = 3600 s$					
Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$G$
<sup>133</sup> Xe	5,24 j	81	5,41E+10	1,24E+10	4,38
<sup>133m</sup> Xe	2,2 j	233,18	1,31E+11	5,56E+10	2,35
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	1,53E+10	6,08E+09	2,51
<sup>135m</sup> Xe	15,3 m	526,56	5,95E+09	3,30E+09	1,80
<sup>137</sup> Xe	3,82 m	455,5	8,81E+10	7,00E+10	1,26
<sup>138</sup> Xe	14,1 m	258,411	4,40E+10	1,79E+10	2,46
		396,5	3,96E+10	2,57E+10	1,54
		434,562	1,03E+11	8,20E+10	1,25
		1768,26	1,37E+09	1,06E+09	1,30
		2015,82	1,43E+09	1,40E+09	1,02
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,58	2,76E+10	1,87E+10	1,47
		2554,8	2,69E+09	1,01E+09	2,67
		845,4	1,11E+10	4,87E+09	2,27
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	1,29E+09	1,29E+09	1,00

		196,3	3,74E+10	1,81E+10	2,07
		195,8	3,74E+10	1,81E+10	2,07
		834,8	1,72E+10	7,87E+09	2,18
		1529,8	8,04E+09	3,57E+09	2,26
<sup>89</sup> Kr	3,15 m	220,9	6,59E+10	3,04E+10	2,17
		586	2,63E+10	2,13E+09	12,38
		904,3	2,82E+10	4,29E+09	6,57
		1472,8	2,62E+10	1,51E+09	17,37
		497,4	2,55E+10	1,12E+10	2,29
<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2	1,51E+10	6,44E+09	2,35

$t_r = 10 \text{ s}, t = 3600 \text{ s}$					
Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$G$
<sup>133</sup> Xe	5,24 j	81	5,16E+10	1,18E+10	4,38
<sup>133m</sup> Xe	2,2 j	233,18	1,25E+11	5,31E+10	2,35
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	1,46E+10	5,81E+09	2,51
<sup>135m</sup> Xe	15,3 m	526,56	5,68E+09	3,16E+09	1,80
<sup>137</sup> Xe	3,82 m	455,5	8,41E+10	6,69E+10	1,26
<sup>138</sup> Xe	14,1 m	258,411	4,20E+10	1,71E+10	2,46
		396,5	3,78E+10	2,45E+10	1,54
		434,562	9,82E+10	7,83E+10	1,25
		1768,26	1,35E+09	1,06E+09	1,28
		2015,82	1,42E+09	1,39E+09	1,02
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,58	2,63E+10	1,79E+10	1,47
		2554,8	2,62E+09	1,01E+09	2,59
		845,4	1,06E+10	4,67E+09	2,27
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	1,29E+09	1,29E+09	1,00
		196,3	3,57E+10	1,73E+10	2,07
		195,8	3,57E+10	1,73E+10	2,07
		834,8	1,64E+10	7,53E+09	2,18
		1529,8	7,71E+09	3,44E+09	2,24
<sup>89</sup> Kr	3,15 m	220,9	6,29E+10	2,90E+10	2,17
		586	2,52E+10	2,06E+09	12,24
		904,3	2,70E+10	4,13E+09	6,52
		1472,8	2,51E+10	1,50E+09	16,70
		497,4	2,44E+10	1,07E+10	2,28
<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2	1,44E+10	6,14E+09	2,35

$t_r = 30 \text{ s}, t = 3600 \text{ s}$					
Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$G$
<sup>133</sup> Xe	5,24 j	81	4,29E+10	9,82E+09	4,37
<sup>133m</sup> Xe	2,2 j	233,18	1,04E+11	4,42E+10	2,35



$^{135}\text{Xe}$	9,14 h	249,8	1,21E+10	4,83E+09	2,51
$^{135\text{m}}\text{Xe}$	15,3 m	526,56	4,74E+09	2,64E+09	1,79
$^{137}\text{Xe}$	3,82 m	455,5	6,99E+10	5,55E+10	1,26
$^{138}\text{Xe}$	14,1 m	258,411	3,49E+10	1,42E+10	2,45
		396,5	3,14E+10	2,04E+10	1,54
		434,562	8,16E+10	6,50E+10	1,25
		1768,26	1,30E+09	1,06E+09	1,23
		2015,82	1,38E+09	1,36E+09	1,02
$^{87}\text{Kr}$	1,3 h	402,58	2,19E+10	1,49E+10	1,47
		2554,8	2,34E+09	1,01E+09	2,32
		845,4	8,84E+09	3,93E+09	2,25
$^{88}\text{Kr}$	2,8 h	2392,1	1,29E+09	1,29E+09	1,00
		196,3	2,97E+10	1,44E+10	2,07
		195,8	2,97E+10	1,44E+10	2,07
		834,8	1,37E+10	6,33E+09	2,16
		1529,8	6,54E+09	2,99E+09	2,19
$^{89}\text{Kr}$	3,15 m	220,9	5,23E+10	2,41E+10	2,17
		586	2,10E+10	1,80E+09	11,66
		904,3	2,25E+10	3,57E+09	6,30
		1472,8	2,10E+10	1,48E+09	14,24
		497,4	2,03E+10	8,93E+09	2,27
$^{85\text{m}}\text{Kr}$	4,5 h	151,2	1,20E+10	5,11E+09	2,35

$t_r = 60 \text{ s}, t = 3600 \text{ s}$					
Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$G$
$^{133}\text{Xe}$	5,24 j	81	3,25E+10	7,46E+09	4,35
$^{133\text{m}}\text{Xe}$	2,2 j	233,18	7,85E+10	3,35E+10	2,34
$^{135}\text{Xe}$	9,14 h	249,8	9,18E+09	3,66E+09	2,51
$^{135\text{m}}\text{Xe}$	15,3 m	526,56	3,61E+09	2,03E+09	1,78
$^{137}\text{Xe}$	3,82 m	455,5	5,29E+10	4,21E+10	1,26
$^{138}\text{Xe}$	14,1 m	258,411	2,64E+10	1,08E+10	2,45
		396,5	2,38E+10	1,55E+10	1,54
		434,562	6,18E+10	4,93E+10	1,25
		1768,26	1,24E+09	1,06E+09	1,18
		2015,82	1,35E+09	1,33E+09	1,01
$^{87}\text{Kr}$	1,3 h	402,58	1,66E+10	1,13E+10	1,47
		2554,8	2,02E+09	1,01E+09	2,00
		845,4	6,77E+09	3,05E+09	2,22
$^{88}\text{Kr}$	2,8 h	2392,1	1,29E+09	1,29E+09	1,00
		196,3	2,25E+10	1,09E+10	2,06
		195,8	2,25E+10	1,09E+10	2,06
		834,8	1,05E+10	4,90E+09	2,14
		1529,8	5,14E+09	2,46E+09	2,09

<sup>89</sup> Kr	3,15 m	220,9	3,96E+10	1,83E+10	2,16
		586	1,60E+10	1,50E+09	10,70
		904,3	1,72E+10	2,91E+09	5,93
		1472,8	1,62E+10	1,45E+09	11,21
		497,4	1,55E+10	6,87E+09	2,25
<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2	9,08E+09	3,87E+09	2,34

$t_r = 300 \text{ s}, t = 3600 \text{ s}$					
Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	G
<sup>133</sup> Xe	5,24 j	81	3,61E+09	8,09E+08	4,46
<sup>133m</sup> Xe	2,2 j	233,18	8,77E+09	2,26E+09	3,88
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	1,03E+09	2,77E+08	3,71
<sup>135m</sup> Xe	15,3 m	526,56	4,95E+08	6,84E+08	0,72
<sup>137</sup> Xe	3,82 m	455,5	5,91E+09	1,50E+09	3,95
<sup>138</sup> Xe	14,1 m	258,411	2,96E+09	8,16E+08	3,62
		396,5	2,75E+09	1,27E+09	2,17
		434,562	6,84E+09	1,40E+09	4,87
		1768,26	1,08E+09	5,98E+09	0,18
		2015,82	1,24E+09	6,95E+09	0,18
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,58	1,91E+09	8,19E+08	2,33
		2554,8	1,12E+09	5,72E+09	0,20
		845,4	1,01E+09	1,83E+09	0,55
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	1,29E+09	1,29E+09	1,00
		196,3	2,50E+09	5,67E+08	4,41
		195,8	2,50E+09	5,66E+08	4,42
		834,8	1,53E+09	2,60E+09	0,59
		1529,8	1,26E+09	4,53E+09	0,28
<sup>89</sup> Kr	3,15 m	220,9	4,41E+09	1,08E+09	4,09
		586	2,21E+09	3,12E+09	0,71
		904,3	2,59E+09	4,74E+09	0,55
		1472,8	2,96E+09	7,71E+09	0,38
		497,4	2,06E+09	2,55E+09	0,81
<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2	1,01E+09	2,28E+08	4,44

$t_r = 600 \text{ s}, t = 3600 \text{ s}$					
Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	G
<sup>133</sup> Xe	5,24 j	81	3,56E+08	1,91E+08	1,86
<sup>133m</sup> Xe	2,2 j	233,18	9,13E+08	6,17E+08	1,48
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	1,09E+08	7,27E+07	1,50
<sup>135m</sup> Xe	15,3 m	526,56	1,44E+08	1,33E+08	1,08
<sup>137</sup> Xe	3,82 m	455,5	6,10E+08	5,38E+08	1,13
<sup>138</sup> Xe	14,1 m	258,411	3,17E+08	2,14E+08	1,48

		396,5	3,79E+08	3,24E+08	1,17
		434,562	6,52E+08	5,69E+08	1,15
		1768,26	1,06E+09	1,06E+09	1,00
		2015,82	1,23E+09	1,23E+09	1,00
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,58	2,53E+08	2,18E+08	1,16
		2554,8	1,02E+09	1,01E+09	1,01
		845,4	3,69E+08	3,42E+08	1,08
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	1,29E+09	1,29E+09	1,00
		196,3	2,47E+08	1,71E+08	1,45
		195,8	2,47E+08	1,71E+08	1,45
		834,8	5,29E+08	4,89E+08	1,08
		1529,8	8,27E+08	8,09E+08	1,02
<sup>89</sup> Kr	3,15 m	220,9	4,50E+08	3,10E+08	1,45
		586	6,56E+08	5,63E+08	1,17
		904,3	9,51E+08	8,54E+08	1,11
		1472,8	1,46E+09	1,36E+09	1,07
		497,4	5,51E+08	4,93E+08	1,12
<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2	9,96E+07	6,53E+07	1,53

$t_r = 900 \text{ s}, t = 3600 \text{ s}$					
Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	G
<sup>133</sup> Xe	5,24 j	81	1,60E+08	1,47E+08	1,09
<sup>133m</sup> Xe	2,2 j	233,18	4,42E+08	4,16E+08	1,06
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	5,39E+07	5,08E+07	1,06
<sup>135m</sup> Xe	15,3 m	526,56	1,27E+08	1,23E+08	1,03
<sup>137</sup> Xe	3,82 m	455,5	2,90E+08	2,79E+08	1,04
<sup>138</sup> Xe	14,1 m	258,411	1,59E+08	1,50E+08	1,06
		396,5	2,39E+08	2,31E+08	1,04
		434,562	2,75E+08	2,65E+08	1,04
		1768,26	1,06E+09	1,06E+09	1,00
		2015,82	1,22E+09	1,22E+09	1,00
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,58	1,55E+08	1,49E+08	1,04
		2554,8	1,01E+09	1,01E+09	1,00
		845,4	3,40E+08	3,28E+08	1,04
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	1,29E+09	1,29E+09	1,00
		196,3	1,11E+08	1,05E+08	1,06
		195,8	1,11E+08	1,04E+08	1,06
		834,8	4,83E+08	4,66E+08	1,04
		1529,8	8,00E+08	7,99E+08	1,00
<sup>89</sup> Kr	3,15 m	220,9	2,12E+08	1,99E+08	1,06
		586	5,78E+08	5,59E+08	1,03
		904,3	8,77E+08	8,46E+08	1,04
		1472,8	1,37E+09	1,36E+09	1,00

		497,4	4,75E+08	4,60E+08	1,03
<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2	4,48E+07	4,19E+07	1,07

$t_r = 1200 \text{ s}, t = 3600 \text{ s}$					
Isotope	Demi-vie	Energie (keV)	$AMD_{PF,nonfiltré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$AMD_{PF,filtré}$ (Bq.m <sup>-3</sup> )	$G$
<sup>133</sup> Xe	5,24 j	81	8,65E+09	8,58E+09	1,01
<sup>133m</sup> Xe	2,2 j	233,18	2,42E+10	2,40E+10	1,01
<sup>135</sup> Xe	9,14 h	249,8	2,96E+09	2,94E+09	1,01
<sup>135m</sup> Xe	15,3 m	526,56	7,28E+09	7,26E+09	1,00
<sup>137</sup> Xe	3,82 m	455,5	1,59E+10	1,59E+10	1,00
<sup>138</sup> Xe	14,1 m	258,411	8,71E+09	8,67E+09	1,01
		396,5	1,35E+10	1,35E+10	1,00
		434,562	1,49E+10	1,49E+10	1,00
		1768,26	6,33E+10	6,33E+10	1,00
		2015,82	7,35E+10	7,35E+10	1,00
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	402,58	8,73E+09	8,69E+09	1,00
		2554,8	6,05E+10	6,05E+10	1,00
		845,4	1,95E+10	1,94E+10	1,00
<sup>88</sup> Kr	2,8 h	2392,1	7,75E+10	7,75E+10	1,00
		196,3	6,05E+09	6,02E+09	1,01
		195,8	6,04E+09	6,01E+09	1,01
		834,8	2,77E+10	2,76E+10	1,00
		1529,8	4,79E+10	4,79E+10	1,00
<sup>89</sup> Kr	3,15 m	220,9	1,15E+10	1,15E+10	1,01
		586	3,33E+10	3,31E+10	1,00
		904,3	5,05E+10	5,02E+10	1,00
		1472,8	8,16E+10	8,16E+10	1,00
		497,4	2,72E+10	2,70E+10	1,00
<sup>85m</sup> Kr	4,5 h	151,2	2,43E+09	2,42E+09	1,01



## ABREVIATIONS

**AMD** Activités Minimales Détectables

**ASTRID** *Advanced Sodium Technological Reactor for Industrial Demonstration*

**A. U** Arrêt d'Urgence

**BCC** Bouchon Couvercle Cœur

**BGO** Bismuth Germanium Oxide

**BTI** Bouchage Total Instantané

**CEA** Commissariat à l'Energie Atomique et aux énergies alternatives

**CFV** Cœur à Faible Vidange

**DG** Détecteur de Garde

**DND** *Delayed Neutron Detection*

**DNDI** *Integrated Delayed Neutron Detection*

**DOE** *Department Of Energy*

**DRG** Détection de Rupture de Gaines

**FSC** Facteur de Suppression Compton

**GIF** Forum International Génération IV

**HPGe** *High Purity Germanium*

**JAEA** *Japan Atomic Energy Agency*

**JOG** Joint Oxyde Gaine

**LCAE** Laboratoire Capteurs et Architecture Electronique

**LRG** Localisation de Rupture de Gaines

**MCNP** *Monte-Carlo N-Particle transport code*

**NaI** Iodure de sodium

**PA** Produit d'Activation

**PF** Produit de Fission

**PFEND** Produits de Fission Emetteurs de Neutrons Différés

**PNS** Protection Neutronique Supérieure

**REP** Réacteur à Eau Pressurisée

**RESC** Réacteurs à Eau SuperCritique

**REX** Retour d'Expérience

**RIB** Remontée Intempestive de Barre

**RNR** Réacteur à Neutrons Rapides

**RNR-Na** Réacteur à Neutrons Rapides refroidi au sodium

**ROS** Réaction Oxyde-Sodium

**RSB** Rapport Signal sur Bruit

**RSF** Réacteurs et à Sels Fondus

**RTHT** Réacteurs à Très Haute Température

**SP** Spectromètre Primaire

**SSC** Système à Suppression Compton

## REFERENCES

- [1] « L'épuisement des ressources », [www.edf.fr](http://www.edf.fr).
- [2] CEA, « Projets pour le futur », *Les réacteurs nucléaires à caloporteur sodium*, p. 177-201, 2014.
- [3] J.-P. Cretté, « Réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium », *Tech. l'ingénieur*, vol. 33, 2012.
- [4] CEA, *Les réacteurs nucléaires à caloporteur sodium*. 2014.
- [5] CEA, *L'instrumentation et la mesure en milieu nucléaire*. 2018.
- [6] J. Guidez et G. Prêle, *Superphenix : les acquis techniques et scientifiques*. 2016.
- [7] J. Guidez, *Phénix : le retour d'expérience*. 2013.
- [8] J. F. Sauvage, *Phénix : une histoire de coeur et d'énergie*. 2003.
- [9] CEA, *Les réacteurs à neutrons rapides de 4ème génération à caloporteur sodium : le démonstrateur technologique ASTRID*. 2012.
- [10] CEA, « Historique et bilan de fonctionnement des RNR-Na », *Les réacteurs nucléaires à caloporteur sodium*, p. 45-75, 2014.
- [11] *Joint Evaluated Fission and Fusion (JEFF) Nuclear Data Library*. 2017.
- [12] CEA, *Séparation-Transmutation des éléments radioactifs à vie longue*. 2012.
- [13] CEA, « Conception des réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium », *Les réacteurs nucléaires à caloporteur sodium*, p. 29-44, 2014.
- [14] T. Sauvage, « Intégrité du coeur d'un réacteur à neutrons rapides », CNAM, 1985.
- [15] CEA, « ASTRID : Pré-design du coeur CFV », CEA/DEN/CAD/DER/SPRC/LEDC, 2015.
- [16] CEA, « La technologie des RNR-Na », *Les réacteurs nucléaires à caloporteur sodium*, p. 93-153, 2014.
- [17] J. P. Jeannot, « Note de synthèse sur l'état d'avancement de l'instrumentation coeur pour les RNR-Na », CEA/DEN/CAD/DTN/STPAILIET/2010/039, 2010.
- [18] G. Galli, « Etude des décharges partielles dans une chambre à fission haute température », Université de Paris-Saclay, 2018.
- [19] « Astrid », <http://www.cea.fr>.
- [20] « Le point sur le projet ASTRID - les recherches de R&D et de multi-recyclage se poursuivent », <http://www.sfen.org>.
- [21] T. Beck *et al.*, « Conceptual design of ASTRID fuel sub-assemblies », *Nucl. Eng. Des.*,



- 2017.
- [22] F. Bertrand, N. Marie, G. Prulhière, J. Lecerf, et J. M. Seiler, « Comparison of the behaviour of two core designs for ASTRID in case of severe accidents », *Nucl. Eng. Des.*, 2016.
- [23] M. S. Chenaud *et al.*, « Status of the ASTRID core at the end of the preconceptual design phase 1 », *Nucl. Eng. Technol.*, 2013.
- [24] IRSN, « Défense en profondeur », *www.irsn.fr*.
- [25] J. P. Trapp, « Ruptures de gaine dans les réacteurs rapides refroidis au sodium : Phénoménologie et détection en réacteur », CEA/RT/SSAE/LSMN/2000/0001, 2000.
- [26] M. Maillot, « Caractérisation des Effets Spatiaux dans les Grands Coeurs RNR : Méthodes, Outils et Etudes », Université d'Aix-Marseille, 2016.
- [27] C. Jammes, « ASTRID - Contamination Measurement System (CMS): Technical requirements and general functional architecture », CEA/DEN/CAD/DER/SPESI/LDCI, 2018.
- [28] M. Tourasse, M. Boidron, et B. Pasquet, « Fission product behaviour in phenix fuel pins at high burnup », *J. Nucl. Mater.*, 1992.
- [29] M. Pelletier, « Pérennisation des connaissances sur les RNR sodium Thème de R&D : évolution et détection des ruptures de gaine », CEA/SESC/LSC/PA102XG24518, 2002.
- [30] M. Pelletier, « Problématique des ruptures de gaine dans un RNR refroidi au sodium », Mémo CEA : DEC/SESC, 2012.
- [31] T. Sauvage, « Mise au point d'une chaîne de mesure des produits de fission gazeux radioactifs (réacteur surgénérateur Phénix) », CNAM, 1990.
- [32] P. Michaille, J. P. Jeannot, et G. Guillot, « Synthèse des ruptures de gaine gaz », CEA/DEIM/DIR/PA100XG98232, 2008.
- [33] R. Coulon, « Synthèse sur la surveillance de l'intégrité des gaines combustibles pour les réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium liquide », CEA/LIST/DSCI/RAP/13-0078, 2013.
- [34] T. Sauvage, « Integrity of a fast neutron reactor core », CNAM, 1985.
- [35] C. Jammes, P. Filliatre, B. Geslot, T. Domenech, et S. Normand, « Assessment of the high temperature fission chamber technology for the french fast reactor program », *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, 2012.
- [36] Superphénix, « Localisation de rupture de gaine », Plan RGR, 1996.
- [37] G. Galli *et al.*, « Characterization and localization of partial-discharge-induced pulses in fission chambers designed for sodium-cooled fast reactors », in *EPJ Web of Conferences*, 2018.

- [38] R. Coulon, E. Rohée, J. Dumazert, S. Garti, P. Filliatre, et C. Jammes, « Design of a delayed neutron detection system for the ASTRID Sodium-cooled fast reactor », *EPJ Web Conf.*, 2018.
- [39] R. Coulon, E. Rohée, J. Dumazert, S. Garti, P. Filliatre, et C. Jammes, « Ex-Vessel Delayed Neutron Detection Systems for the ASTRID Sodium-Cooled Fast Reactor », *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, 2018.
- [40] A. H. Booth, « A method of calculating fission gas diffusion from UO<sub>2</sub> fuel and its application to the X-2-f loop test », 1957.
- [41] Y. Guerin, « Fuel performance of fast spectrum oxide fuel », in *Comprehensive Nuclear Materials*, 2012.
- [42] CEA, *Les combustibles nucléaires*. 2015.
- [43] T. Pham, « Caractérisation et modélisation du comportement thermodynamique du combustible RNR\_Na sous irradiation », Université d'Aix Marseille, 2014.
- [44] F. Gupta, « Etude du comportement du produit de fission césium dans le dioxyde d'uranium par méthode ab-initio », Université Paris XI, 2008.
- [45] CEA, « Le combustible pour réacteurs à neutrons rapides à métaux liquides », *Les Combust. nucléaires*, p. 91-93, 2015.
- [46] CEA, « À quoi ressemble le combustible des réacteurs à eau ? », *Les Combust. nucléaires*, p. 9-12, 2015.
- [47] B. J. Lewis, « Fission product release from nuclear fuel by recoil and knockout », *J. Nucl. Mater.*, 1987.
- [48] M. Tonks *et al.*, « Unit mechanisms of fission gas release: Current understanding and future needs », *Journal of Nuclear Materials*. 2018.
- [49] J. A. Turnbull, C. A. Friskney, J. R. Findlay, F. A. Johnson, et A. J. Walter, « The diffusion coefficients of gaseous and volatile species during the irradiation of uranium dioxide », *J. Nucl. Mater.*, 1982.
- [50] A. Paul, T. Laurila, V. Vuorinen, et S. V. Divinski, *Thermodynamics, diffusion and the kirkendall effect in solids*. 2014.
- [51] J. Belle, « Westinghouse atomic power developments report », WAPD-MRP-80, 1959.
- [52] J. Belle, « Westinghouse atomic power developments report », WAPD-MRP-82, 1959.
- [53] A. B. Auskern et J. Belle, « Uranium ion self diffusion in UO<sub>2</sub> », *J. Nucl. Mater.*, 1961.
- [54] R. Lindner et H. Matzke, « Diffusion von Xe-133 in Uranoxyd verschiedenen Sauerstoffgehaltes », *Zeitschrift für Naturforschung - Section A Journal of Physical Sciences*. 1959.
- [55] F. Susko, « Cited by “J. Belle, Uranium dioxide : properties and applications” », *USAEC*,

- 1961.
- [56] W. H. Stevens, J. R. MacEwan, et A. M. Ross, « US Report TID-7610 », 1960.
- [57] G. Jackson, D. Davies, P. Biddle, et M. Waterman, « UKAEA Report AERE-R-4714 », 1964.
- [58] D. F. Toner et J. L. Scott, « ASTM », *Symp. Radiat. Eff. Refract. Fuel Compd.*, vol. 306, p. 86-99, 1961.
- [59] R. H. Barnes, M. Kangilaski, J. B. Melehan, et F. A. Rough, « US Report BMI-1533 », 1961.
- [60] K. Taketani et K. Ikawa, « Release of Xenon from Sintered UO<sub>2</sub> at Low Temperatures », *J. Nucl. Sci. Technol.*, 1967.
- [61] J. B. Melehan, R. H. Barnes, J. E. Gates, et F. A. Rough, « US Report BMI-1623 », 1963.
- [62] A. Michel, « Etude du comportement des gaz de fission dans le dioxyde d'uranium : mécanismes de diffusion, nucléation et grossissement de bulles », Université de Caen, 2011.
- [63] G. Carlot et P. Garcia, « Literature review and proposal for experiments on the thermal diffusion of xenon and krypton in uranium dioxide-First characterization results », CEA technical report, SESC/LLCC 03-010, 2013.
- [64] G. T. Lawrence, « A review of the diffusion coefficient of fission-product rare gases in uranium dioxide », *J. Nucl. Mater.*, 1978.
- [65] J. A. Turnbull, « The distribution of intragranular fission gas bubbles in UO<sub>2</sub> during irradiation », *J. Nucl. Mater.*, 1971.
- [66] C. A. Friskney et J. A. Turnbull, « The characteristics of fission gas release from uranium dioxide during irradiation », *J. Nucl. Mater.*, 1979.
- [67] H. Matzke, « Fundamental Aspects of Inert Gas Behaviour in Nuclear Fuels: Oxides, Carbides and Nitrides », 1991.
- [68] C. Bagger, M. Mogensen, et C. T. Walker, « Temperature measurements in high burnup UO<sub>2</sub> nuclear fuel: Implications for thermal conductivity, grain growth and gas release », *J. Nucl. Mater.*, 1994.
- [69] J. R. Findlay, M. J. Waterman, R. H. Brooks, et R. G. Taylor, « The emission of fission products from uranium-plutonium dioxide during irradiation to high burn-up », *J. Nucl. Mater.*, 1970.
- [70] K. Govers, S. Lemehov, et M. Verwerft, « In-pile Xe diffusion coefficient in UO<sub>2</sub> determined from the modeling of intragranular bubble growth and destruction under irradiation », *J. Nucl. Mater.*, 2008.
- [71] L. C. Bernard, J. L. Jacoud, et P. Vesco, « An efficient model for the analysis of fission gas release », *J. Nucl. Mater.*, 2002.

- [72] P. van Uffelen, G. Pastore, V. di Marcello, et L. Luzzi, « Multiscale modelling for the fission gas behaviour in the TRANSURANUS Code », *Nucl. Eng. Technol.*, 2011.
- [73] L. Noirot, « MARGARET: A comprehensive code for the description of fission gas behavior », *Nucl. Eng. Des.*, 2011.
- [74] B. Marchand, « Effets de la température et de l'irradiation sur la mobilité du xénon dans l'UO<sub>2</sub> : étude profilométrique et Microstructurale », Université de Claude Bernard Lyon 1, 2012.
- [75] P. Filliatre, C. Jammes, et V. Verma, « Etude de la DRG-Gaz : modélisation de la fuite et identification des isotopes d'intérêt », CEA/DEN/CAD/DER/SPEX/LDCI, 2015.
- [76] E. Rohée, « Détection des ruptures de gaines sur les RNR-Na par spectrométrie gamma hauts taux de comptage », Université Caen Normandie, 2016.
- [77] R. Coulon et E. Rohée, « Detection and Analysis of Fuel Cladding Damages Using Gamma Ray Spectroscopy », in *IAEA FR17 conference record*, 2017.
- [78] H. Bateman, « Solution of a system of differential equations », *Proc. Cambridge Philos. Soc. Math. Phys. Sci.*, 1910.
- [79] C. Vénard, « Dossier de Caractérisation du coeur CFV-1500-AIM1 V3 », CEA, NT DER/SPRC/LEDC/14-001, 2014.
- [80] J. Pedlosky et J. S. Robertson, « Geophysical Fluid Dynamics by Joseph Pedlosky », *J. Acoust. Soc. Am.*, 2005.
- [81] J. Fourier, A. Fick, et A. Einstein, « Lecture 3 : Diffusion : Fick ' s first law », 2008.
- [82] M. Abramowitz, I. A. Stegun, et D. Miller, « Handbook of Mathematical Functions With Formulas, Graphs and Mathematical Tables (National Bureau of Standards Applied Mathematics Series No. 55) », *J. Appl. Mech.*, 1965.
- [83] J. B. J. Fourier, *Théorie Analytique de la Chaleur*. 2010.
- [84] P. R. Vasudeva Rao, S. Anthonysamy, M. V. Krishnaiah, et V. Chandramouli, « Oxygen potential and thermal conductivity of (U, Pu) mixed oxides », *J. Nucl. Mater.*, 2006.
- [85] C. Lacressonniere et L. Brissonneau, « Rex sur le transfert de masse et la contamination dans les réacteurs rapides refroidis au sodium », CEA/DEN/DTN/STPA/LPC/2007/56, 2007.
- [86] P. Mazgaj, P. Darnowski, et S. Gurgacz, « Comparison of Simple Design of Sodium and Lead Cooled Fast Reactor Cores », *J. Power Technol.*, vol. 94, p. 16–26, 2014.
- [87] B. J. Lewis, P. K. Chan, A. El-Jaby, F. C. Iglesias, et A. Fitchett, « Fission product release modelling for application of fuel-failure monitoring and detection - An overview », *J. Nucl. Mater.*, 2017.
- [88] Z. Hózer, « Simulation of leaking fuel rods in a VVER reactor », *Ann. Nucl. Energy*, 2014.

- [89] Jean MARTIN, « Étanchéité en mécanique », *Tech. l'Ingénieur*, 2004.
- [90] W. Sutherland, « LII. The viscosity of gases and molecular force », *London, Edinburgh, Dublin Philos. Mag. J. Sci.*, 2011.
- [91] G. A. Lindsay, « Pressure Energy and Bernoulli's Principle », *Am. J. Phys.*, 2005.
- [92] P. Michaille, « Contamination émise par les ruptures de gaine : modèle de relâchement des gaz de fission », Note technique CEA, DRNR/STRA/LCPC 84/1042, 1984.
- [93] P. Michaille, « Contamination du gaz de couverture, "Description des signaux de gaz de fission de Phénix" », Rapport CEA, NT DRNR/STRA/LCPC 85/086, 1985.
- [94] G. F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, 4th Ed. Wil. 2010.
- [95] T. M. Semkow *et al.*, « Low-background gamma spectrometry for environmental radioactivity », *Appl. Radiat. Isot.*, 2002.
- [96] J. A. Kulisek, J. K. Hartwell, M. E. McIlwain, et R. P. Gardner, « Design and preliminary Monte Carlo calculations of an active Compton-suppressed LaBr<sub>3</sub>(Ce) detector system for TRU assay in remote-handled wastes », *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, 2007.
- [97] L. E. Smith, Z. He, D. K. Wehe, et G. F. Knoll, « Pulse processing electronics with anticoincident circuitry for a multi-channel portable gamma camera », in *IEEE Nuclear Science Symposium & Medical Imaging Conference*, 1996.
- [98] R. Britton, J. L. Burnett, A. V. Davies, et P. H. Regan, « Monte-Carlo optimisation of a Compton suppression system for use with a broad-energy HPGe detector », *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, 2014.
- [99] Q. Zou, J. J. Zhu, Z. An, et Y. P. Zhang, « Monte Carlo optimization of a Compton suppression system for gamma-ray diagnosis of combustion plasma », *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, 2018.
- [100] *IEEE Standard Test Procedures for Germanium Gamma-Ray Detectors*. 1996.
- [101] D. Massé, A. Adam, et J. Laurec, « A GeNaI(Tl) spectrometer with Compton suppression and gamma coincidence counting. Application to <sup>189</sup>Ir and <sup>101</sup>Rh activity measurements », *Nucl. Inst. Methods Phys. Res. A*, 1991.
- [102] C. Chung, L. J. Yuan, et K. B. Chen, « Performance of a HPGe-NaI(Tl) Compton suppression spectrometer in high-level radioenvironmental studies », *Nucl. Inst. Methods Phys. Res. A*, 1986.
- [103] K. Fukuda, J. Ohkuma, T. Asano, et Y. Satoh, « Performance of a Ge-BGO Compton-suppression spectrometer and its application to photon activation analysis », *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, 1996.
- [104] S. L. Tabor, « BGO suppressed gamma detector arrays », *Nucl. Inst. Methods Phys. Res. B*, 1987.

- [105] H. J. M. Aarts, G. A. P. Engelbertink, C. J. van der Poel, D. E. C. Scherpenzeel, et H. F. R. Arciszewski, « Improvement of the performance of a Compton-suppression spectrometer by minimizing the dead layer of the central Ge detector », *Nucl. Instruments Methods*, 1980.
- [106] H. J. M. Aarts, C. J. Van der Poel, D. E. C. Scherpenzeel, H. F. R. Arciszewski, et G. A. P. Engelbertink, « A Compton suppression spectrometer for gamma - gamma coincidence measurements: large solid angle and excellent suppression. », *Nucl. instruments methods*, 1980.
- [107] P. J. Nolan, D. W. Gifford, et P. J. Twin, « The performance of a special geometry bismuth germanate escape suppressed spectrometer », *Nucl. Inst. Methods Phys. Res. A*, vol. 236, p. 95-99, 1985.
- [108] K. Iniewski, *Semiconductor Radiation Detection Systems*. 2010.
- [109] Canberra, *Germanium Detectors User's Manual 9231358B*. 2003.
- [110] R. Coulon, J. Dumazert, et S. Garti, « Procédé de caractérisation d'un spectromètre, produit-programme d'ordinateur et calculateur associés », Demande déposée le 17/12/2018 sous la référence FR1873097.
- [111] J. T. Goorley *et al.*, « MCNP6 user's manual », *LA-CP-13-00634, Los Alamos Natl. Lab.*, 2013.
- [112] E. Eftekhari Zadeh, S. A. H. Fegghi, E. Bayat, et G. H. Roshani, « Gaussian Energy Broadening Function of an HPGe Detector in the Range of 40 keV to 1.46 MeV », *J. Exp. Phys.*, 2014.
- [113] G. Gilmore Spectrometry, Practical Gamma-ray et E. Gordon, *Practical Gamma-ray Spectrometry Practical Gamma-ray Spectrometry 2nd Edition*. 2008.
- [114] « Periodic Table of Elements and X-ray Energies », [www.bruker.com/hhxf/](http://www.bruker.com/hhxf/) .
- [115] « Référence BGO »:, <https://scionix.nl/wp-content/uploads/2017/07/Compton-suppression-shields.pdf> .
- [116] « Référence Hexagon », <https://www.caensys.com> .
- [117] R. Coulon, « Spectrométrie gamma haute résolution et hauts taux de comptage sur primaire de réacteur de type génération 4 au sodium liquide », Université de CAEN, 2010.
- [118] E. A. Mansour, « Quantification préliminaire des termes sources », Rapport AREVA AST 1 INC NT ANP 00206 A PREL, 2011.
- [119] « Java-based Nuclear Data Information System », [www.oecd-nea.org/janis/](http://www.oecd-nea.org/janis/).
- [120] M. E. Hammad *et al.*, « Pile-up correction algorithm for high count rate gamma ray spectroscopy », *Appl. Radiat. Isot.*, 2019.
- [121] M. Bolic, V. Drndarevic, et W. Gueaieb, « Pileup correction algorithms for very-high-

count-rate gamma-ray spectrometry with NaI(Tl) detectors », in *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement*, 2010.

[122] J. F. Oliver et M. Rafecas, « Modelling random coincidences in positron emission tomography by using singles and prompts: A comparison study », *PLoS One*, 2016.

[123] ASN, « Incidents/Accidents », *www.asn.fr*.

## Titre

Spectrométrie gamma haute résolution et bas bruit Compton pour la détection des ruptures de gaine dans les réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium.

## Résumé

Les réacteurs de quatrième génération sont développés dans le but de renouveler la filière énergétique du nucléaire avec des réacteurs plus sûrs, plus propres, optimisant la consommation du minerai uranium et produisant moins de déchets de vie longue. La France a investi dans le développement de la technologie des réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium. Par le passé, des prototypes ont été construits et exploités tels que RAPSODIE, PHENIX, SUPERPHENIX ; et depuis 2006, le Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives (CEA) est en charge de la conception du futur prototype de cette filière : ASTRID. C'est dans ce cadre que les équipes du CEA travaillent sur l'élaboration de moyens instrumentaux permettant de garantir l'intégrité absolue de la première barrière de confinement : la gaine des aiguilles combustibles. En effet, le niveau de sûreté à atteindre dans le programme génération 4 oblige l'exploitant à surveiller en continu la propreté du fluide caloporteur primaire. Pour assurer cette fonction de sûreté, différents systèmes sont implémentés, tels que les systèmes de détection des neutrons différés (DND) et les systèmes de spectrométrie gamma. Ces systèmes sont en continuelle mutation depuis leurs premières exploitations par des programmes R&D, assurant la prise en compte du retour d'exploitation de ces instruments et la remise à niveau en regard des avancées technologiques et des nouveaux moyens numériques de conception. L'instrumentation historique pour le suivi isotopique des gaz de fission par spectrométrie gamma est très bruitée et est compromise par la présence de lignes à retard d'environ 15 minutes nécessaires à la désactivation du  $^{23}\text{Ne}$  ( $T_{1/2}=38\text{ s}$ ). De plus, l'autre source de bruit, *i.e.* l' $^{41}\text{Ar}$ , présentant une période de 110 minutes, n'a pas été filtrée par cette instrumentation. En effet, ce dernier ne perd que 7% de son activité dans ces lignes à retard.

Au regard des exigences de sûreté fixées pour les RNR-Na, nous étudierons dans le cadre de cette thèse l'apport potentiel d'une instrumentation bas bruit au moyen d'un système à suppression Compton intégré au poste de mesure RNR-Na. L'enjeu majeur d'une telle instrumentation serait, d'une part, d'enrichir le diagnostic par la détection des produits de fission de courte période ( $\sim 3\text{ min}$ ), lesquels peuvent signer précocement une mise en contact entre le combustible et le caloporteur dangereuse pour la sûreté du réacteur, d'autre part, d'assurer une détection rapide par l'amélioration du temps de réponse de la mesure.

Dans un premier temps, le terme source des produits de fission est caractérisé par la mise en équation des différents phénomènes physiques régissant le comportement des gaz de fission dans un environnement de type RNR-Na faisant suite à une rupture de gaine. Des activités attendues des produits de fission sont ainsi estimées. Dans un second temps, une instrumentation bas bruit Compton est étudié au moyen d'une modélisation Monte Carlo. Cette étude préalable permet de caractériser l'instrumentation à la recherche d'un facteur de mérite attendu. Ces résultats numériques sont ensuite validés expérimentalement avant d'être optimisés au moyen d'une étude de dimensionnement. Enfin, la modélisation de la mesure spectrométrique bas bruit est implémentée pour la problématique des ruptures de gaine dans le cadre d'un environnement RNR-Na. Des activités minimales détectables de produits de fission sont, d'abord, estimées puis comparées aux activités attendues. La plus-value de cette



instrumentation comme un outil de diagnostic puissant et efficace pour la détection précoce des pertes d'étanchéité dans un réacteur RNR-Na est alors exposée.

### Mots-clés

Spectrométrie gamma, bas bruit Compton, réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium, système à suppression Compton, réacteur de quatrième génération, instrumentation nucléaire, méthode Monte Carlo, produits de fission.

## Title

High resolution and low-background gamma spectrometry for clad failure detection in Sodium Fast Reactors.

## Abstract

Fourth generation reactors are being developed for renewing the nuclear energy industry with safer reactors that optimize uranium resources and produce less long-lived radioactive waste. France has focused on the development of SFR “Sodium Fast Reactor”. In the past, prototypes have been built and operated such as Rapsodie, Phénix, Superphénix. Since 2006, the CEA (French Atomic Energy Commission) has overseen the design of the future prototype of this technology: ASTRID. It is within this framework that teams at the French Atomic Energy Commission are working on the development of instrumental means to guarantee the absolute integrity of the first containment barrier: the fuel cladding. Indeed, the safety level to be achieved in the fourth-generation program requires the operator to continuously monitor the fission products released into the primary coolant. To ensure this safety function, various systems were implemented, such as delayed neutron detection (DND) and gamma spectrometry systems. These systems have been upgraded since their first operations through R&D programs in line with technological advances and new digital design methods.

The historical gamma spectrometry instrumentation for clad failure monitoring is compromised by the presence of significant background that leads to delay lines of about 15 minutes necessary for the  $^{23}\text{Ne}$  ( $T_{1/2}=38$  s) decay. In addition, the other background source, i.e.  $^{41}\text{Ar}$ , with a half-life of 110 minutes, was not filtered by this instrumentation. Indeed, it loses only 7 % of its activity in these delay lines.

Regarding the safety requirement set for SFR, we will study in the frame of this work the potential contribution of a low background instrumentation by means of a Compton suppression system integrated into the SFR measuring device. The main goal of such an instrumentation would be, first, to strengthen the diagnostic of the detection of short-period fission products (about 3 min) which could indicate an early contact between the fuel and the coolant that can be dangerous for the reactor safety, second, to ensure a fast detection by improving the measuring response time.

First, the source term of fission products was characterized by putting into equation various physical phenomena that govern the behavior of fission gas in an SFR environment following a clad failure. Expected fission products activities have been estimated. Second, we performed a numerical study, by means of the Monte Carlo method, of a low background instrumentation, from its experimental validation to its optimization. Finally, we implemented the model for the problem of cladding failure in the case of SFR environment. Minimum detectable activities have been estimated then compared to expected activities. The added value of this instrumentation for applications to the early detection of clad failures in an SFR environment will then be exposed.

## Keywords

Low Compton background gamma spectrometry, Sodium Fast Reactors, Compton suppression system, Fourth-generation reactors, Nuclear instrumentation, Monte-Carlo methods, Fission products.

