

# ACCIDENT DE CRITICITÉ - CODAC ET L'ÉVALUATION DES DOSES

Alain THOMASSIN<sup>1</sup>, Emmanuelle ARIAL<sup>1</sup>, Michaël LAGET<sup>2</sup>, Véronique MASSE<sup>2</sup>

1 : Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire, BP17  
92262 Fontenay-aux-Roses CEDEX, France

2 : CEA/DEN/DANS/DM2S/SERMA/CP2C, Boîte Courrier n°57 – Bât. 470  
91191 Gif-sur-Yvette CEDEX, France

## 1. INTRODUCTION

Le propos de cette communication est de présenter une comparaison des évaluations de dose en cas d'accident de criticité réalisées par l'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN) avec celles réalisées par des exploitants d'installations nucléaires concernées par ce risque et ayant récemment fait l'objet d'une instruction par l'IRSN.

Après avoir rappelé le contexte de ces évaluations et fait une rapide présentation de l'application CODAC de l'IRSN, des évaluations de dose en cas d'accident de criticité avec CODAC sont comparées à celles réalisées avec l'application CIRCEE pour les deux installations nucléaires ATALANTE et MELOX. Une analyse des résultats est menée permettant de conclure quant à la démarche d'expertise de l'IRSN.

## 2. CONTEXTE

Les accidents de criticité peuvent conduire à des expositions très élevées des opérateurs situés à proximité du lieu de l'excursion critique. Ainsi que l'a montré l'accident de Tokai-Mura au Japon en 1999 [1], des débits de dose significatifs peuvent également être observés à des distances importantes du lieu de l'accident (plusieurs mSv.h<sup>-1</sup> à plusieurs centaines de mètres). Ceci impose de s'intéresser en cas d'accident de criticité non seulement à l'exposition des travailleurs de l'installation concernée mais aussi à celle des autres travailleurs du site ainsi qu'à celle de la population se trouvant à proximité.

Aussi, et ainsi que l'a requis l'Autorité de sûreté nucléaire (ASN) [2], les exploitants d'installations nucléaires mettant en œuvre des matières fissiles présentent désormais dans leurs dossiers de sûreté des cartes de doses susceptibles d'être reçues lors d'hypothétiques accidents de criticité, dans l'installation et dans son environnement. En tant qu'appui technique de l'ASN, l'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN) s'est doté en 2011 de l'application CODAC<sup>(1)</sup>, permettant d'évaluer rapidement l'ordre de grandeur des conséquences dosimétriques d'un accident de criticité dans une large gamme de configurations. Depuis sa réalisation, CODAC a été utilisé à plusieurs reprises par l'IRSN lors de l'instruction de dossiers de sûreté de différentes installations nucléaires de base.

## 3. CODAC

CODAC [3] est une application simple consistant en une bibliothèque de configurations d'accidents de criticité et une interface de requête.

Les configurations (source, air intercalaire, protection, distance) calculées sont sphériques et correspondent à la bibliothèque suivante :

---

<sup>(1)</sup> Acronyme pour Conséquences Dosimétriques d'un Accident de Criticité.

- les sources :
  - de poudre sèche d'oxyde de plutonium ( $\text{PuO}_2$ ) de densités 3,5, 5,5 et 11. Le volume retenu pour chaque source est celui établi en considérant la masse critique en milieu non réfléchi et non modéré ; soit les rayons et volumes respectifs suivants : 27,3 cm et 85,2 L, 17,4 cm et 22,1 L, 8,7 cm et 2,8 L ;
  - solides de plutonium métallique (Pu) de densités 15,8 et 19,8. Le volume retenu pour chaque source est celui établi en considérant la masse critique en milieu non réfléchi et non modéré ; soit les rayons et volumes respectifs suivants : 6,2 cm et 1 L, 5 cm et 0,5 L ;
  - de solution aqueuse de nitrate de plutonium ( $\text{Pu}(\text{NO}_3)_3$ ) à la concentration de  $10 \text{ g.L}^{-1}$  de plutonium de volumes  $274 \text{ L}^{(2)}$ ,  $1 \text{ m}^3$  et  $25 \text{ m}^3$  ; soit les rayons respectifs suivants : 40 cm, 62 cm et 181 cm ;
  - de solution aqueuse de nitrate de plutonium ( $\text{Pu}(\text{NO}_3)_3$ ) à la concentration de  $200 \text{ g.L}^{-1}$  de plutonium de volumes  $16 \text{ L}^{(2)}$ ,  $1 \text{ m}^3$  et  $25 \text{ m}^3$  ; soit les rayons respectifs suivants : 16 cm, 62 cm et 181 cm ;
- l'air intercalaire : la source peut être géométriquement séparée de la face 'chaude' de la protection par un espace d'air, nommé air intercalaire, d'épaisseur 10 cm, 1 m, 2 m, 5 m ou 10 m.
- les protections monocouches en :
  - béton ordinaire (densité 2,35), de 10 cm à 1 m par pas de 10 cm et de 1 m à 3 m par pas de 20 cm ;
  - béton lourd à la colémanite (densité 1,88) ou à la magnétite (densité 3,3) ou à la barytine (densité 3,3), de 10 cm à 1 m par pas de 10 cm et de 1 m à 2 m par pas de 20 cm ;
  - acier inoxydable (densité 7,8), de 1 cm à 5 cm par pas de 1 cm et de 5 cm à 35 m par pas de 5 cm ;
  - verre au plomb (densité 4,23), de 10 cm à 1 m par pas de 10 cm, 1,2 m et 1,4 m ;
  - plomb (densité 11,34), de 5 cm à 25 cm par pas de 5 cm.

Il est possible de considérer des protections bicouches constituées de l'association de certaines des protections monocouches avec du béton ordinaire ; dans ce cas, les deux couches sont sans espace intercalaire.

- les distances suivantes :
  - depuis le centre de la source : 5 cm, 10 cm et tous les 10 cm jusque 1 m, tous les 50 cm jusque 3 m, tous les 1 m jusque 10 m, tous les 2 m jusque 20 m, 25 m, 30 m, puis tous les 10 m jusque 100 m et enfin tous les 50 m jusque 1 km ;
  - depuis la face froide de la protection : 5 cm, 10 cm et tous les 10 cm jusque 1 m, tous les 50 cm jusque 3 m, tous les 1 m jusque 10 m.

Le terme source est normalisé à  $5 \cdot 10^{18}$  fissions de  $^{239}\text{Pu}$  (2,874 neutrons en moyenne par fission) ; cet isotope du plutonium conduit aux doses les plus élevées parmi les radionucléides fissiles. Les rayonnements prompts de fission sont retenus ainsi que les gammas issus des captures des neutrons au cours de leur transport. Les débits de fluence (par groupe d'énergie) de chaque configuration sont archivés dans la bibliothèque. La

---

<sup>(2)</sup> Correspondant à la masse critique minimale en milieu non réfléchi.

fonction réponse de flux en équivalent de dose ambiant  $H^*(10)$  de la publication 74 de la Commission internationale de protection radiologique (CIPR) est utilisée pour calculer les doses ; cette fonction réponse, adaptée pour les faibles doses, pourrait toutefois conduire à sous-estimer les doses réelles au-delà de 100 mSv. Les configurations ont été calculées avec le code de calcul aux ordonnées discrètes à 1 dimension SAS1 [4] du formulaire SCALE. CODAC a fait l'objet d'une qualification avec le code de calcul Monte Carlo MCNP5 [5].

En termes d'usage, l'utilisateur définit dans l'interface la configuration la plus proche de celle qu'il étudie. Il peut choisir des distances de calcul différentes de celles des configurations de la bibliothèque, CODAC interpolant sur cette variable. Enfin, la normalisation de la source ainsi que la fonction réponse de flux en dose sont modifiables.

#### 4. EXEMPLES D'APPLICATION

Les calculs présentés ci-après pour les deux installations nucléaires de base ATALANTE et MELOX ont été réalisés avec l'application CIRCEE<sup>(3)</sup> [6] [7] du Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives (CEA). CIRCEE permet le calcul de doses sur une installation complète, dans sa réalité à trois dimensions via l'import de modèles CAO, et utilise pour cela une bibliothèque de facteurs d'atténuation de dose pré-calculés avec le code SN1D du CEA [8]. Les facteurs d'atténuation sont calculés pour des protections en béton ordinaire, béton boré, béton à la magnétite, acier et plomb et pour des épaisseurs pouvant aller jusque 2 m ; des compositions bicouches sont possibles. CIRCEE considère une source ponctuelle ou des sphères d'eau à l'intérieur desquelles sont placées les sources de fission, et de volume jusque 1000 L. Les rayonnements prompts de fission ainsi que les gammas secondaires issus des captures des neutrons au cours de leur transport sont retenus. CIRCEE calcule les doses en tout point du bâtiment et dans ses alentours pour toute source placée en un point de celui-ci. CIRCEE calcule des doses dans l'air ou des équivalents de dose ambiant  $H^*(10)$  avec les fonctions réponse de la publication 74 de la CIPR, et présente ses résultats sous forme de cartes isodoses. CIRCEE a fait l'objet d'une qualification avec le code TRIPOLI-4 du CEA [9].

##### 4.1. ATALANTE

L'installation nucléaire de base n°148 ATALANTE<sup>(4)</sup> est exploitée par le CEA sur le site de Marcoule dans le département du Gard. Cette installation de recherche en radiochimie regroupe des laboratoires travaillant sur l'amélioration des procédés de traitement du combustible usé (hydrométallurgie et pyrométallurgie, séparation des radionucléides à vie longue des produits de fission à l'aide de molécules extractantes, transmutation, etc.) avec des équipements d'analyse et de procédés mis en œuvre dans un environnement de boîtes à gants et de chaînes blindées. À ce titre, ATALANTE met en œuvre des quantités significatives de matières radioactives et/ou fissiles et est confrontée au risque de criticité de ces dernières.

Lors des suites du dernier réexamen de sûreté de 2007, l'exploitant d'ATALANTE a présenté [10] à l'ASN des calculs de dose avec CIRCEE dans son installation et ses environs, pour des accidents de criticité postulés dans différents locaux :

---

<sup>(3)</sup> Acronyme pour code de Calcul des Iso-doses en cas de Risque de Criticité en Environnement Évolutif.

<sup>(4)</sup> Acronyme pour ATelier Alpha et Laboratoires pour ANalyses, Transuraniens et Études de retraitement.

- les laboratoires sur la chimie des actinides, ainsi que les chaînes blindées dédiées au traitement des déchets et aux dissolutions du bâtiment de chimie de haute activité ;
- le magasin des matières et la chaîne blindée d'essais en intégration du bâtiment du laboratoire d'études en géométrie sûre ;
- les laboratoires de chimie du solide du bâtiment des services généraux actifs ;
- la chaîne blindée du bâtiment de développement du retraitement et analyse.

Ces calculs ont été soumis à l'IRSN pour instruction et CODAC a été utilisé pour apprécier les résultats présentés.

L'exploitant d'ATALANTE a considéré la géométrie réelle en trois dimensions du bâtiment avec les épaisseurs exactes des murs, tandis que l'IRSN a relevé les épaisseurs des protections sur les plans transmis au cours de l'instruction. L'exploitant a modélisé la source par une sphère d'eau de volume 6 L à l'intérieur de laquelle sont placées les sources de fission, tandis que l'IRSN a modélisé la source par une sphère de nitrate de plutonium de concentration  $200 \text{ g.L}^{-1}$  et de volume 16 L.

#### 4.1.1. Le laboratoire de chimie des actinides

Le tableau 1 présente les résultats de CIRCEE et CODAC au nord du bâtiment de chimie de haute activité. La protection retenue par l'IRSN est du béton ordinaire d'épaisseur 50 cm, avec un air intercalaire de 5 m d'épaisseur.

**Tableau 1 : ATALANTE – Laboratoire de chimie des actinides –  $5.10^{18}$  fissions**

##### Doses au nord du bâtiment

Distance <sup>(5)</sup> (m)	CIRCEE (mSv)	CODAC (mSv)
20	> 300	> 300
30	[100 - 300[	193
40	[100 - 300[	112
60	[50 - 100[	53
80	[20 - 50[	31
100	[20 - 50[	20
120	[20 - 50[	14
140	[20 - 50[	11
160	[10 - 20[	8
180	[10 - 20[	6

<sup>(5)</sup> Comptée à partir du lieu siège de l'accident de criticité.

#### 4.1.2. La chaîne blindée de traitement des déchets

Le tableau 2 présente les résultats de CIRCEE et CODAC à l'ouest du bâtiment de chimie de haute activité. La protection retenue par l'IRSN est du plomb d'épaisseur 20 cm (paroi de la chaîne blindée) suivie par du béton ordinaire d'épaisseur 30 cm (murs des salles adjacentes et du bâtiment), avec un air intercalaire de 1 m d'épaisseur.

**Tableau 2 : ATALANTE – Chaîne de traitement des déchets –  $5.10^{18}$  fissions**

##### Doses à l'ouest du bâtiment

Distance <sup>(5)</sup> (m)	CIRCEE (mSv)	CODAC (mSv)
30	> 300	> 300
40	> 300	209
60	[100 - 300[	97
80	[100 - 300[	55
100	[50 - 100[	35
120	[20 - 50[	24
140	[20 - 50[	17
160	[20 - 50[	13
180	[20 - 50[	10

#### 4.1.3. La chaîne blindée de développement du retraitement

Le tableau 3 présente les résultats de CIRCEE et CODAC au sud et à l'ouest du bâtiment de développement du retraitement et analyse. La paroi de la chaîne blindée consiste en un feuilletage d'acier et d'hématite. L'hématite n'est pas un matériau de protection inclus dans les bibliothèques de CIRCEE ni de CODAC. Le CEA et l'IRSN ont comparé des protections en béton à la colémanite et en béton à la magnétite en tant que substitut de ce matériau. Le béton à la magnétite est une protection radiologique gamma au même titre que le béton à l'hématite, et ces matériaux possèdent tous deux une teneur élevée en fer.

La protection modélisée est une épaisseur de béton soit à la colémanite soit à la magnétite, d'épaisseur 100 cm (paroi de la chaîne blindée) suivie par du béton ordinaire d'épaisseur 30 cm ou 50 cm (parois des murs) selon la direction considérée. L'air intercalaire est d'épaisseur 1 m vers le sud et de 5 m vers l'ouest. Les calculs sont réalisés autour de la chaîne blindée (à 5 cm de ses faces 'froides') et dans la salle adjacente la plus proche dans chaque direction de celle abritant la cellule blindée.

**Tableau 3 : ATALANTE – Chaîne blindée du retraitement –  $5.10^{18}$  fissions**
**Doses autour de la chaîne**

		Béton à la colémanite		Béton à la magnétite	
		Autour de la chaîne blindée	Salle la plus proche	Autour de la chaîne blindée	Salle la plus proche
Sud	CIRCEE (mSv)	> 300	< 10	> 300	[20 – 50[
	CODAC (mSv)	> 300	2	> 300	2
Ouest	CIRCEE (mSv)	[100 – 300[	< 10	[100 – 300[	[50 – 100[
	CODAC (mSv)	37	2	116	2

**4.2. MELOX**

L'installation nucléaire de base n°151 MELOX est exploitée par la société AREVA sur le site de Marcoule. Cette installation fabrique des assemblages de combustibles MOX destinés à alimenter des réacteurs à eau légère, en recyclant l'uranium et le plutonium issus du retraitement des combustibles usés à l'usine d'AREVA de La Hague. Un mélange primaire de poudres d'oxyde d'uranium appauvri et d'oxyde de plutonium est suivi d'un mélange secondaire avec de l'uranium appauvri permettant d'atteindre la teneur en plutonium souhaitée. La poudre obtenue est alors compactée en pastilles, lesquelles sont converties en céramiques par cuisson dans un four (frittage). Après rectification, les pastilles sont insérées dans un tube en alliage de zirconium (crayon combustible). Les crayons sont alors assemblés dans une structure métallique pour former un assemblage combustible. Le confinement du procédé est principalement assuré par des boîtes à gants. Toutefois, le caractère fissile des matières premières conduit l'exploitant à mettre en œuvre les dispositions nécessaires pour éviter toute excursion critique au cours de ce procédé.

Lors du dernier réexamen de sûreté de 2011, l'exploitant de MELOX a présenté [11] à l'ASN des calculs de dose avec CIRCEE dans les environs de certains locaux, identifiés comme sièges potentiels d'un accident de criticité : l'atelier de dosage, les ateliers 1 et 2 des poudres, l'atelier de pastillage, l'atelier de la presse de mélange final, l'atelier de rectification. Ces calculs ont été soumis à l'IRSN pour instruction et CODAC a été utilisé pour apprécier les résultats présentés.

L'exploitant de MELOX a considéré la géométrie réelle en trois dimensions du bâtiment avec les épaisseurs exactes des murs, tandis que l'IRSN a relevé les épaisseurs des protections sur les plans transmis au cours de l'instruction. L'exploitant a modélisé la source par une sphère d'eau de volume 13,8 L à l'intérieur de laquelle sont placées les sources de fission, tandis que l'IRSN a modélisé la source par une sphère d'une solution de nitrate de plutonium de concentration 200 g.L<sup>-1</sup> et de volume 16 L.

Le tableau 4 présente les résultats de CIRCEE et CODAC au nord du bâtiment abritant la presse de mélange final. La protection retenue par l'IRSN est du béton ordinaire d'épaisseur 40 cm, avec un air intercalaire d'épaisseur 10 m.

**Tableau 4 : MELOX – Presse de mélange final –  $5.10^{18}$  fissions**

**Doses au nord du bâtiment**

Distance <sup>(5)</sup> (m)	CIRCEE (mSv)	CODAC (mSv)
40	> 300	303
50	[100 - 300[	202
100	[50 - 100[	56
130	[20 - 50[	34
150	[20 - 50[	26
200	[10 - 20[	14

### 4.3. DISCUSSION

Dans les documents transmis à l'ASN par les exploitants pour l'instruction par l'IRSN [10] [11], les isodoses sont représentées graphiquement en zones de couleur (correspondant à des intervalles de dose) projetées sur les plans de l'installation. Cette présentation très synthétique ne permet pas une comparaison précise avec des valeurs numériques calculées avec CODAC. L'exercice de comparaison est donc nécessairement approximatif.

Il apparaît toutefois que CIRCEE et CODAC donnent à peu près les mêmes ordres de grandeur sur les configurations ici envisagées, quand bien même des différences significatives sont à noter.

Dans le cas d'une protection monocouche de béton ordinaire, qu'elle soit d'épaisseur 40 cm (presse de mélange final de MELOX) ou 50 cm (laboratoire de chimie des actinides d'ATALANTE), l'accord des ordres de grandeur est satisfaisant ; tout juste CODAC donnant des résultats un peu plus faibles, notamment au-delà d'une distance de 100 m dans le cas de la protection de béton ordinaire d'épaisseur 50 cm.

Dans le cas d'une protection monocouche de béton à la colémanite ou à la magnétite d'épaisseur 100 cm (chaîne blindée de développement du retraitement d'ATALANTE), l'accord semble satisfaisant dans le cas de la magnétite, mais moins bon dans le cas de la colémanite, CODAC sous-estimant CIRCEE.

Dans le cas d'une protection bicouche de béton à la colémanite ou à la magnétite d'épaisseur 100 cm suivie de béton ordinaire d'épaisseur 30 cm ou 50 cm (chaîne blindée de développement du retraitement d'ATALANTE), l'accord semble satisfaisant avec la colémanite, mais ne l'est pas avec la magnétite ; CODAC sous-estimant CIRCEE au moins d'un facteur 25 si le second mur fait 30 cm de béton et au moins d'un facteur 10 si le second mur fait 50 cm de béton. Il est intéressant de relever que l'écart entre CODAC et CIRCEE semble se réduire si l'épaisseur du second mur augmente.

Dans le cas d'une protection bicouche de plomb d'épaisseur 20 cm suivie de béton ordinaire d'épaisseur 30 cm (chaîne blindée de traitement des déchets d'ATALANTE), l'accord est assez satisfaisant (moins d'un facteur 2), même si CODAC a tendance à sous-estimer CIRCEE, et ce d'autant plus que la distance de calcul augmente.

Il ressort de ces quelques comparaisons, que CODAC produit des résultats assez comparables à ceux de CIRCEE, ce qui est cohérent avec le fait que ces deux applications ont été développées de manière analogue : bibliothèque de pré-calculs réalisés avec un code aux ordonnées discrètes (SN1D pour CIRCEE et SAS1 pour CODAC). Des différences sont toutefois observées, parfois importantes. De nombreuses pistes devront être examinées pour expliquer toutes les différences déjà rencontrées sur les configurations étudiées et celles qui

apparaîtront vraisemblablement sur des configurations à venir. Citons, par exemple et sans prétention à l'exhaustivité, quelques points influents sur lesquels porter attention :

- la composition et la densité des matériaux considérés dans chaque application. Des petites différences peuvent en effet conduire à des variations très importantes dans les résultats pour des protections importantes, compte tenu du caractère exponentiel de l'atténuation des rayonnements neutres dans la matière ;
- le traitement des sections efficaces, en particulier celle du fer dont une représentation insuffisamment fine peut conduire à mésestimer le ralentissement des neutrons et consécutivement la production des gammas de capture pouvant conduire à une dose qui sous-estime la dose réelle ;
- l'atténuation dans l'air et les effets de rétrodiffusion pour les points de calculs éloignés (plusieurs centaines de mètres).

## 5. CONCLUSION

Les quelques configurations de comparaison ici présentées illustrent que l'application CODAC de l'IRSN pour l'estimation des doses susceptibles d'être reçues en cas d'accidents de criticité produit des résultats du même ordre de grandeur que l'application CIRCEE du CEA. Compte tenu du grand nombre de configurations pouvant être traitées avec ces deux applications, l'exercice de comparaison devra toutefois être poussé plus loin avant de conclure définitivement. Cette assez bonne adéquation des deux applications est satisfaisante du point de vue de l'expertise que l'IRSN apporte à l'ASN.

Outre la nécessité d'examiner d'autres configurations, la maîtrise des différences de résultats entre CODAC et CIRCEE nécessitera une comparaison approfondie des hypothèses de calcul (composition des matériaux, bibliothèques de données nucléaires, etc.) et des traitements numériques par les codes SN1D et SAS1 (sections efficaces, quadratures, etc.).

## 6. REFERENCES

- [1] **J. TAKADA, M. HOSCHI**, External doses to 350 m zone residents around the Tokai-mura criticality accident site, *Journal of Environmental Radioactivity* 50 (2000) 43-48
- [2] Lettre DSIN-FAR/SD1/N°11204/00 du 3 décembre 20 00
- [3] **M. LAGET**, Calcul des conséquences dosimétriques d'un accident de criticité : Manuel de l'outil, IRSN, Rapport PRP-HOM/SER à paraître
- [4] **J. R. KNIGHT, C. V. PARKS, S. M. BOWMAN, L. M. PETRIE, J. A. BUCHOLZ**, SAS1 : A one-dimensional shielding analysis module, Rapport NUREG/CR-0200 Rév. 6 Volume 1, Section S1 ORNL/NUREG/CSD-2/V1/R6, Oak Ridge National Laboratory, March 2000
- [5] MCNP – A general Monte Carlo N-Particle Transport Code Version 5 – Volume II : User's Guide, LA-CP-03-0245, avril 2003 (révision octobre 2005)
- [6] **V. MASSE**, « CIRCEE un programme de Calculs d'Isodoses appliqué au Risque de Criticité en Environnement Evolutif », poster, Journées codes de calcul en radioprotection, radiophysique et dosimétrie de la SFRP, Sochaux, 2010.
- [7] **M. LAGET**, « CIRCEE : PRINCIPE, VALIDATION ET APPLICATIONS », poster, Journées codes de calcul en radioprotection, radiophysique et dosimétrie de la SFRP, Paris, 2014.
- [8] **G. DEJONGHE, L. LUNEVILLE**, SN1D : "Code de protection nucléaire à une dimension", Rapport interne CEA, 1983.
- [9] **TRIPOLI-4® PROJECT TEAM**, TRIPOLI-4® User Guide, CEA-R-6316, CEA Saclay, 2012
- [10] **V. MASSE**, Évaluation des iso-doses en cas d'accident de criticité INB 148 ATALANTE Marcoule, Rapport DM2S/SERMA/CP2C/RT/08-4513/B
- [11] Rapport de sûreté de MELOX 620 RS 054 B – Volume B – Chapitre 7 – Sûreté de l'environnement