

**Service de Protection contre les Radiations**

**DANGERS DES RAYONNEMENTS AUPRES DES PILES A URANIUM**

**par**

**Henri JOFFRE**

**R.56004 / SR**

UNITES - DOSE MAXIMUM ADMISSIBLE - CORRESPONDANCES D'UNITES

A - UNITES [1].

- 1 - Roentgen. "Le roentgen est la quantité de rayonnement X ou  $\gamma$  telle que l'émission corpusculaire associée produise dans 0,001 293 gramme d'air des ions portant une unité électrostatique de quantité d'électricité de chaque signe".
- 2 - Dose absorbée et rad. "La dose absorbée est la quantité d'énergie abandonnée par les particules ionisantes dans l'unité de masse du matériau irradié".  
L'unité de dose absorbée est le "rad" qui vaut 100 ergs par gramme ( $6,3.10^7$  MeV).
- 3 - Rem et facteur d'efficacité biologique. "Le rem est la quantité de rayonnement telle que l'énergie cédée au milieu biologique (cellule, tissu, organe ou organisme), par gramme de matière vivante, par les particules ionisantes, ait la même efficacité biologique qu'un rad de rayonnements X ayant une ionisation spécifique moyenne de 100 paires d'ions par micron d'eau (2)".

La dose en rem est égale à la dose en rad multipliée par "le facteur d'efficacité biologique" approprié.

B - DOSE MAXIMUM ADMISSIBLE [1].

Pour une irradiation de tout l'organisme la dose maximum admissible est de 0,3 rem/semaine ou 0,06 rem/8 h si l'irradiation hebdomadaire est répartie sur 5 journées de 8 h de travail. La dose maximum admissible pour la population extérieure aux centres atomiques est 0,03 rem/semaine.

C - CORRESPONDANCES D'UNITES.

1 - En énergie.

- Dans l'air, une intensité de rayonnement de 60 mr/8 h (2) équivaut à 109 MeV cédés par seconde et par gramme d'air (dans une chambre d'ionisation le courant sera de  $6,9.10^{-16}$  A/cm<sup>3</sup>).

---

(1) Cette ionisation est celle d'électrons de 7 keV et correspond à l'ionisation moyenne produite dans l'eau par un fond continu de rayons X produits sous une tension de 250 kV.

(2) Dans le présent rapport, on utilise les abréviations suivantes : C pour curie, n pour neutron, r pour roentgen.

- Dans les tissus, une intensité de rayonnement de 60 mrem/8 h équivaut à :

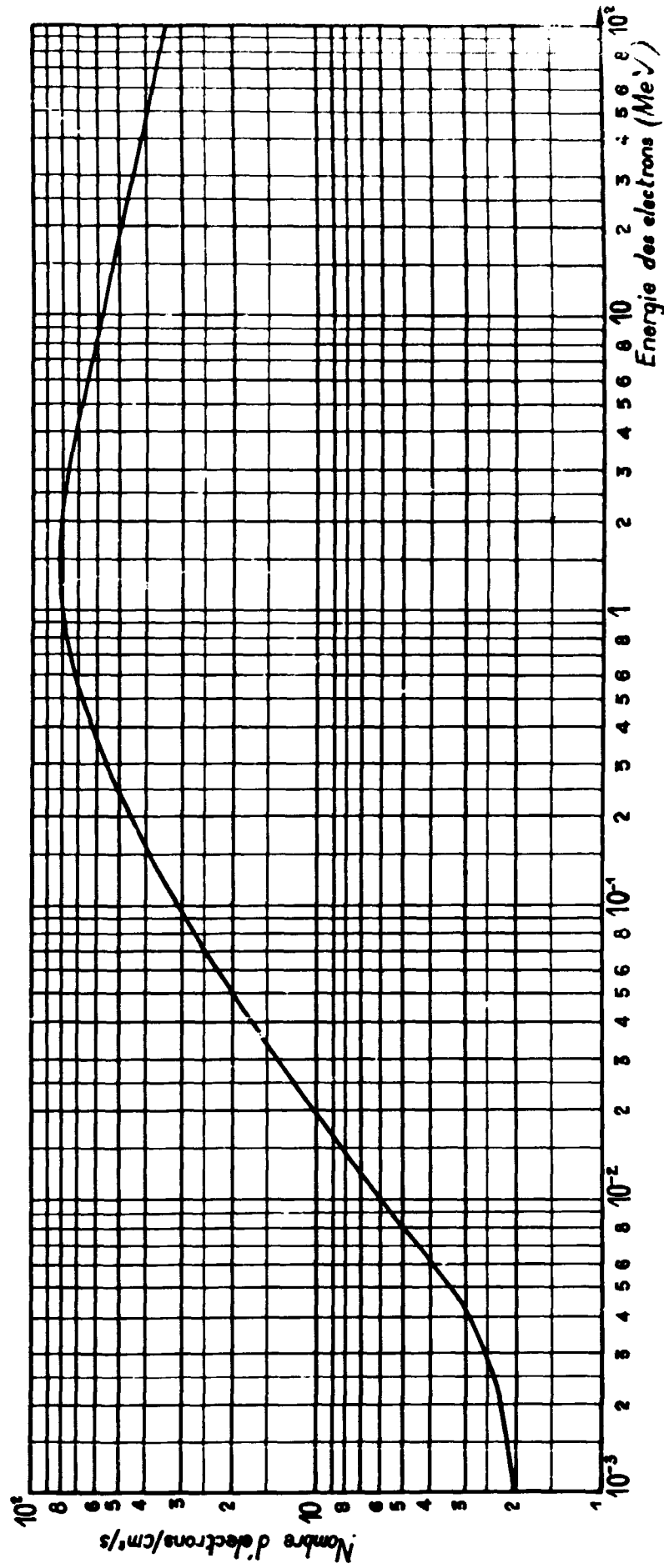
131	MeV/s/g	de tissus pour les $\gamma$ , X et $\beta$ dont le facteur d'efficacité biologique est .....	1
26,2	"	de tissus pour les neutrons thermiques dont le facteur d'efficacité biologique est .....	5
13,1	"	de tissus pour les neutrons rapides et les protons dont le facteur d'efficacité biologique est .....	10
6,5	"	de tissus pour les $\alpha$ dont le facteur d'efficacité biologique est .....	20

1 - En flux (voir fig. 1, 2 et 3).

A une intensité de rayonnement ne dépassant pas dans l'organisme 0,06 rem/8h correspondent dans l'air les flux suivants exprimés en nombre de particules ou de photons par  $\text{cm}^2$  et par seconde :

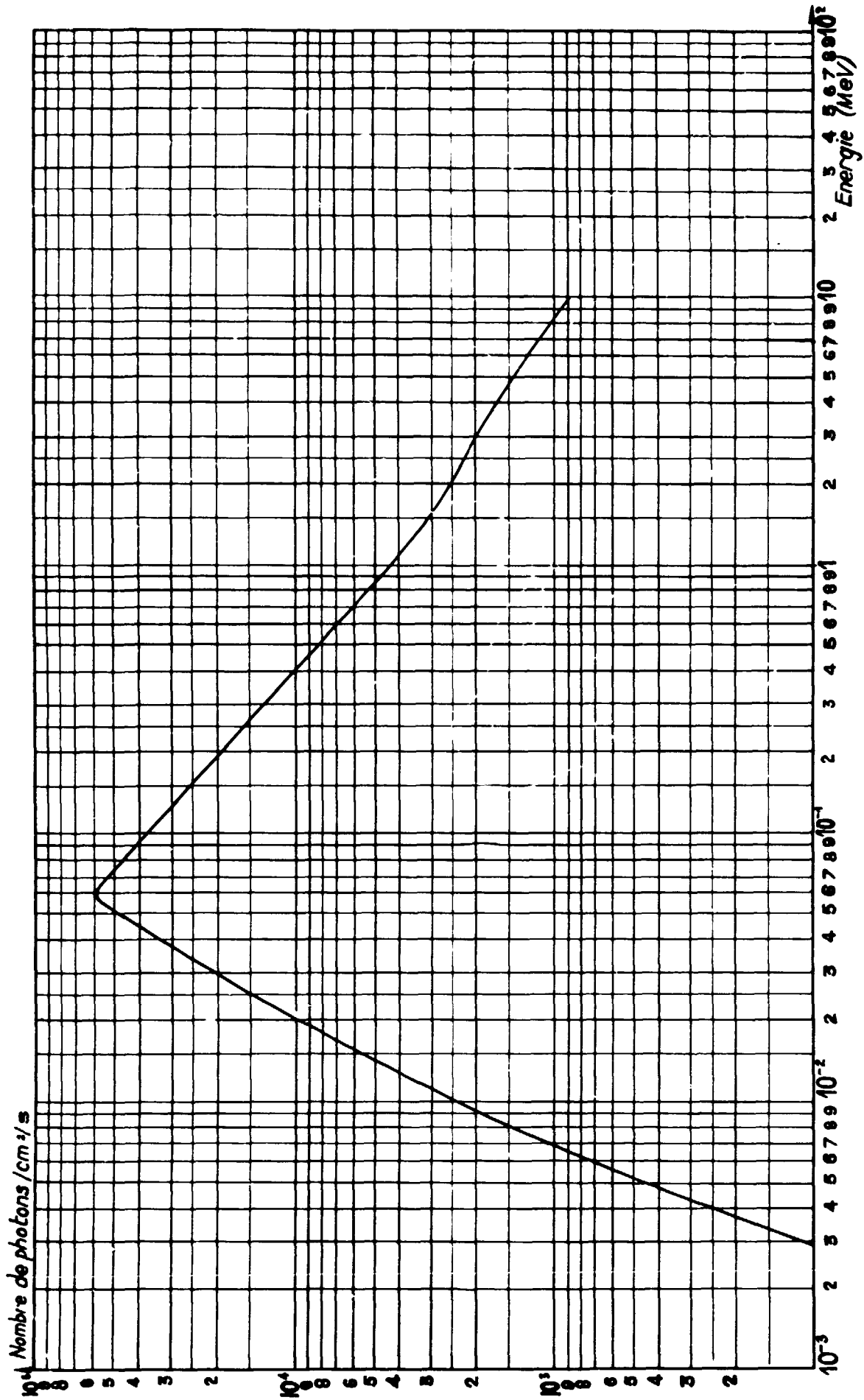
Energie	$10^{-2}$ à 10 eV	keV				MeV	
		1	10	60	100	1	10
Electrons [2]		2	6		32	<u>80</u>	57
Photons [3]			2 300	<u>58 000</u>	37 000	4 200	780
Neutrons [1]	2 000	1 000	400		125	45	25

Les valeurs soulignées sont les valeurs des maxima.



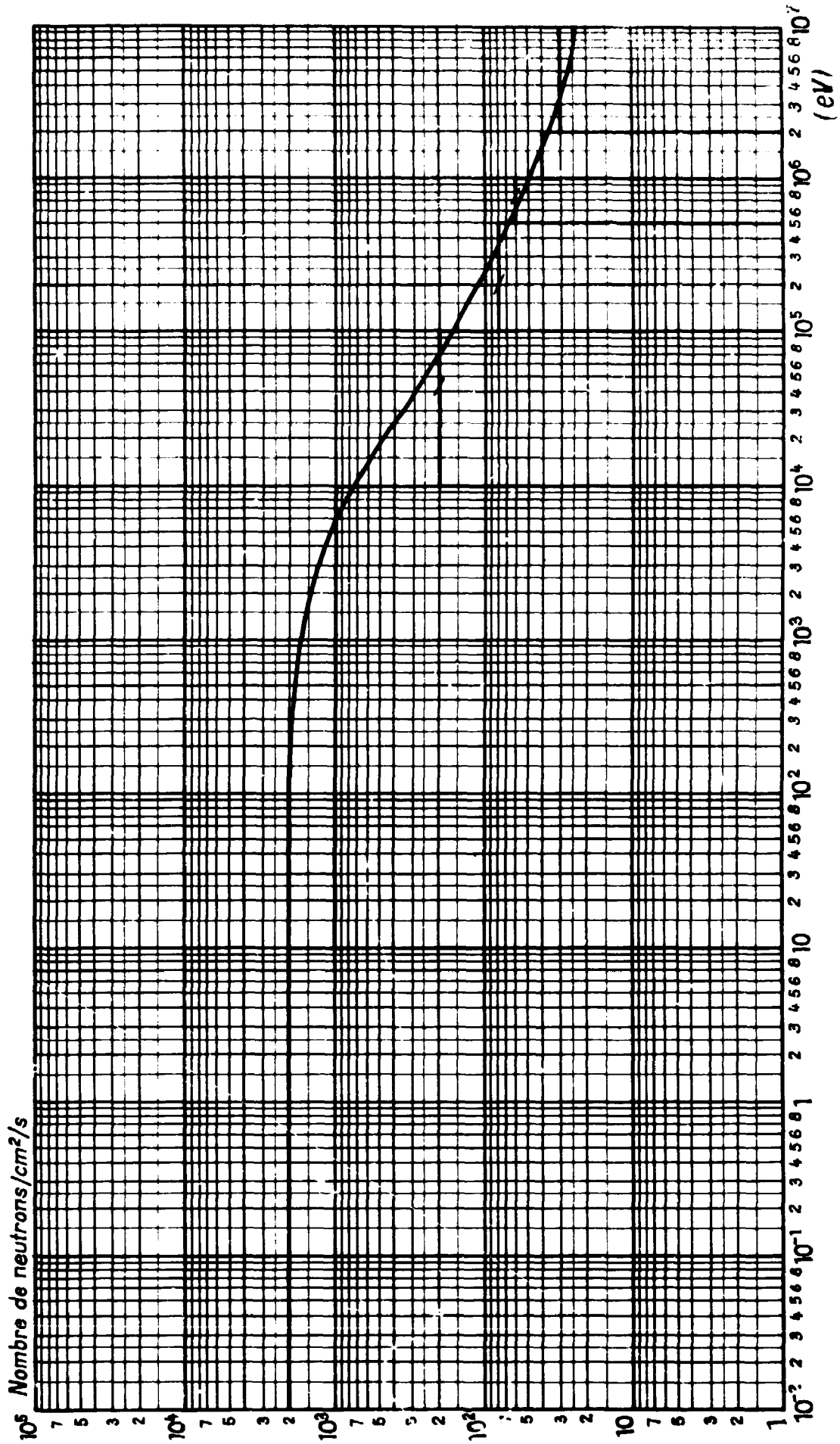
- FIG. 1 -

FLUX MAXIMUM ADMISSIBLE D'ELECTRONS EN FONCTION DE L'ENERGIE POUR 60 mrem/8h.



- FIG. 2 -

FLUX MAXIMUM ADMISSIBLE DE PHOTONS EN FONCTION DE L'ENERGIE POUR 60 mrem/8h.



- FIG. 3 -

FLUX MAXIMUM ADMISSIBLE DE NEUTRONS EN FONCTION DE L'ENERGIE POUR 60 mrem/8h.

DANGERS DES RAYONNEMENTS AUPRES DES PILES EN FONCTIONNEMENT NORMAL

- DANGERS DE L'URANIUM IRRADIE.

1 - Danger d'irradiation  $\gamma$ .

A l'examen des spectres de désintégration des produits de fission [4], on peut remarquer que les énergies des photons émis par les produits de fission peuvent être classées en 4 catégories :

I -	photons d'énergies voisines de 0,4 MeV :	$^{140}\text{Ba}$ , $^{147}\text{Nd}$ , $^{103}\text{Ru}$ ...
II -	" " " 0,75 MeV :	$^{95}\text{Zr}$ , $^{95}\text{Nb}$ , $^{91}\text{Sr}$ , $^{132}\text{I}$ , $^{133}\text{I}$ ...
III -	" " " 1,5 MeV :	$^{140}\text{La}$ , $^{135}\text{I}$ , $^{132}\text{I}$ ...
IV -	" " " 2,5 MeV :	$^{140}\text{La}$ , $^{135}\text{I}$ ...

Connaissant, en outre, les rendements de fission [5] et les périodes radioactives des produits de fission [4], on peut déterminer [6], pour chacune de ces catégories, l'intensité d'ionisation produite et sa décroissance avec le temps.

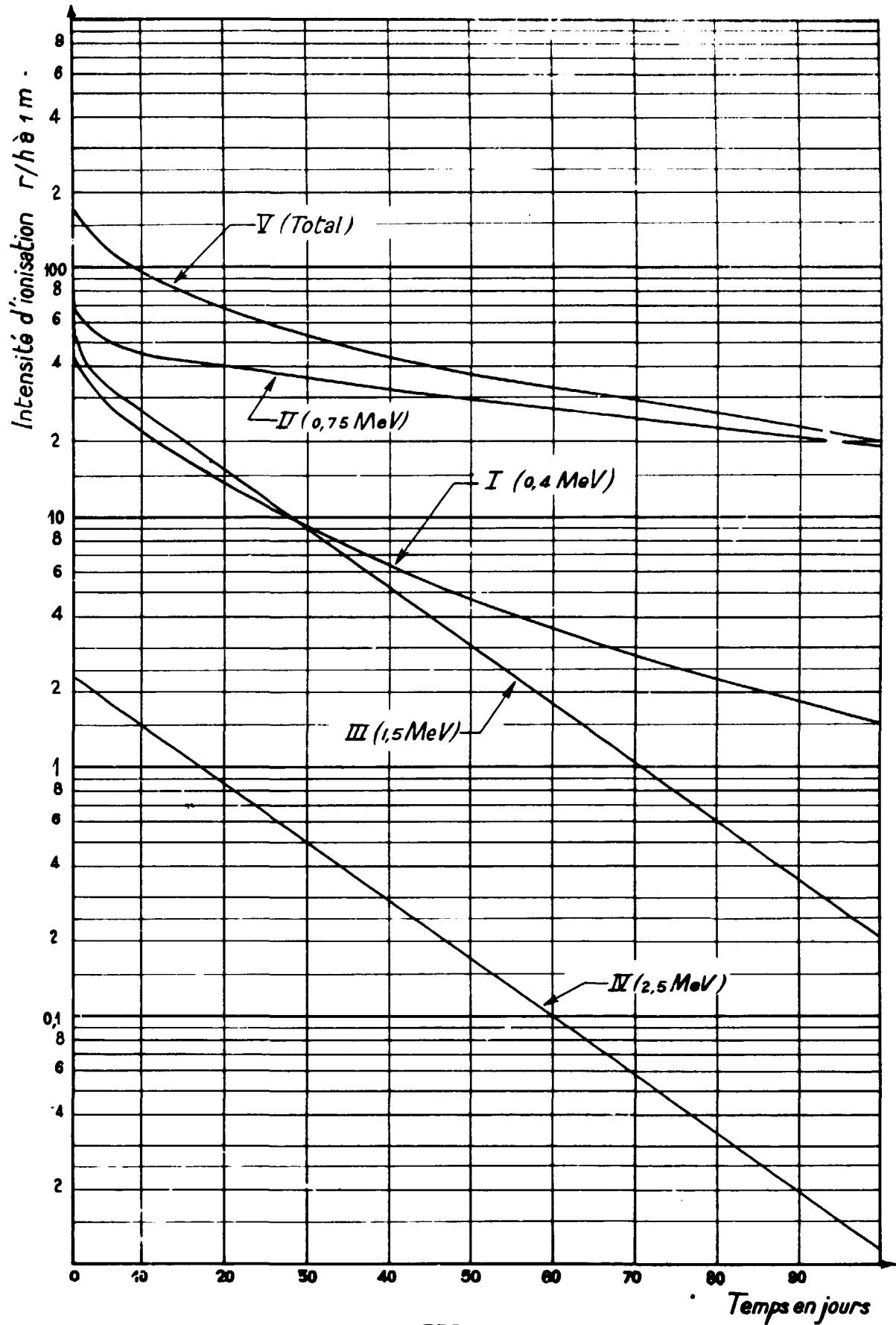
Les courbes de la figure 4 représentent les intensités d'ionisation et leur décroissance pour chacune des catégories d'énergies de photons des produits de fission, pour un temps de décroissance supérieur à 1 h.

Le calcul est effectué pour 1 kg d'uranium irradié à saturation à une puissance de 1 W/g.

Les courbes permettent de déterminer, de façon simple, les épaisseurs des écrans de protection nécessaires pour les manutentions de cartouches d'uranium. Suivant la durée de désactivation, avant manutention des cartouches, et la nature du matériau choisi pour la constitution de l'écran de protection, l'une des 4 catégories de photons est généralement prépondérante.

Par exemple, pour une durée de désactivation de 1 j, les photons de la catégorie III seront seuls à considérer pour la détermination de l'épaisseur de protection.

Pour une durée de désactivation de 3 mois, on considérera les photons de la catégorie II.



- FIG. 4 -

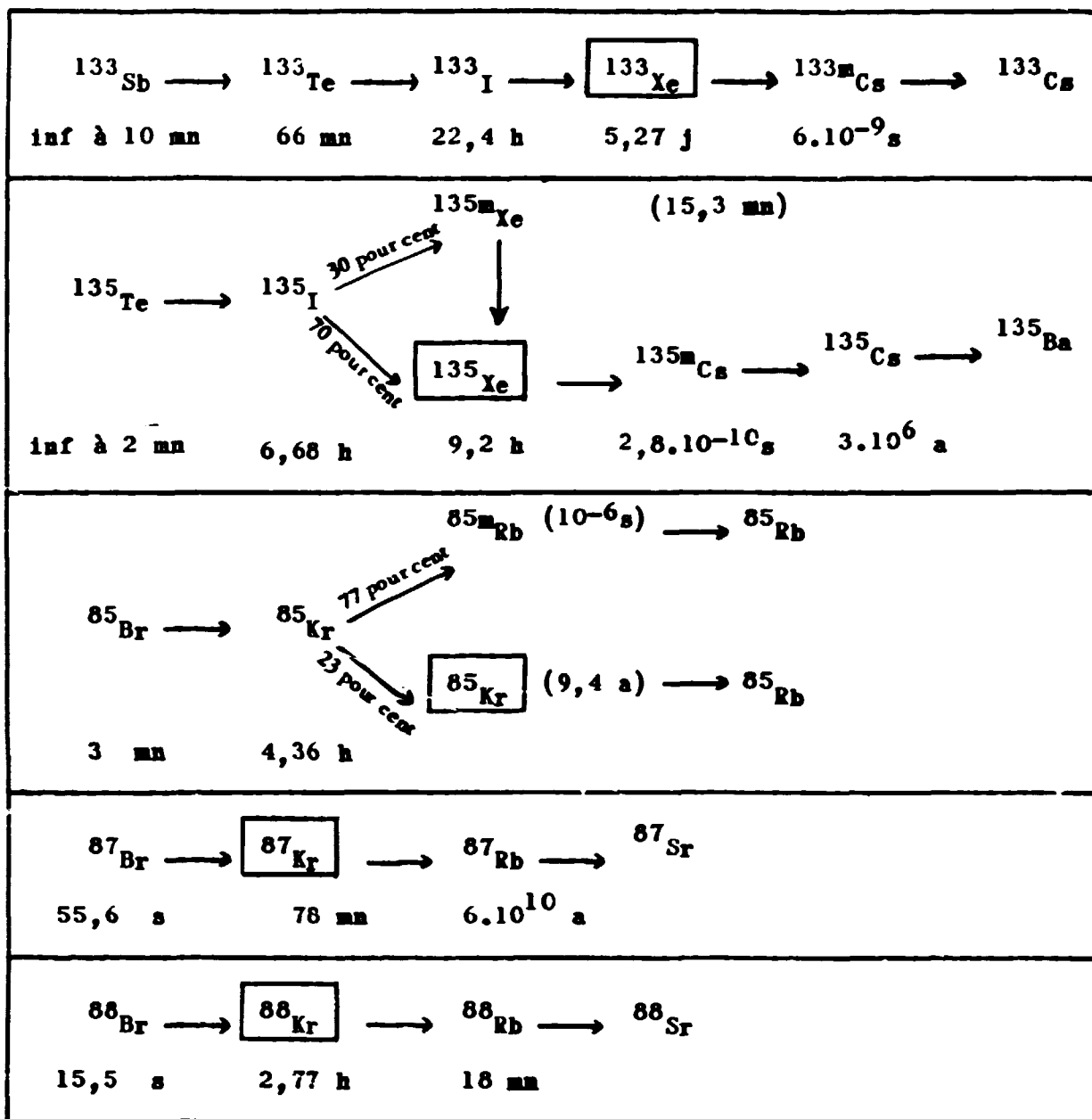
DECROISSANCE D'ACTIVITE  $\gamma$  DE L'URANIUM

1 Kg d'uranium irradié à saturation à 1 W/g  
( $3,14 \cdot 10^{12}$  nth/cm<sup>2</sup>/s dans l'uranium naturel)



2 - Danger de contamination de l'air lors du dégainage des cartouches d'uranium.

Les filiations radioactives des produits de fission [5], [6] conduisant à des activités notables de gaz radioactifs sont indiquées dans le tableau suivant :



Les périodes radioactives conduisant aux gaz de fission sont très courtes. Les radioéléments de filiation de ces gaz ont, soit des périodes trop longues, soit des énergies de désintégration trop faibles pour intervenir de façon sensible dans la détermination des concentrations maxima admissibles des gaz de fission dans l'air.

Les gaz de fission étant des "gaz rares", le calcul de la concentration maximum admissible dans l'air n'est pas basé sur la dose délivrée par l'élément radioactif à l'intérieur du corps, mais sur la dose que reçoit une personne placée dans un nuage infini de gaz radioactif [1].

Dans ces conditions, la concentration maximum admissible sera atteinte lorsque l'énergie absorbée ou émise dans l'air sera :

$$\frac{0,3}{1,13} \text{ rad/sem}$$

(1,13 est le rapport des pouvoirs d'arrêt dans les tissus et l'air pour les particules  $\beta$  et les électrons secondaires produits par les rayonnements X et  $\gamma$ ) [1].

$\frac{0,3}{1,13}$  rad/sem correspond à une énergie absorbée par mètre cube d'air et par seconde de :

$$\frac{0,3}{1,13} \cdot 6,3 \cdot 10^7 \cdot 1,293 \cdot 10^3 \cdot \frac{1}{0,864 \cdot 10^5 \cdot 7} = 0,355 \cdot 10^5 \text{ MeV}$$

La concentration maximum admissible dans l'air d'un gaz radioactif émettant, par désintégration, une énergie moyenne  $E_{\text{MeV}}$  sera :

$$X = \frac{0,355 \cdot 10^5}{E \cdot 3,7 \cdot 10^{10}} \text{ C/m}^3$$

$$X = \frac{0,96}{E} \mu\text{C/m}^3$$

Les activités des gaz de fission présents dans une cartouche d'uranium de 10 kg irradiée à saturation à 1 W/g sont indiquées dans le tableau suivant :

1	2	3 pour cent	4 C	5 mC	6 mC/m <sup>3</sup>	7 10 <sup>4</sup> m <sup>3</sup>
<sup>133</sup> Xe	5,3 j	6,6	562	242	5.10 <sup>-3</sup>	4,8
<sup>135</sup> Xe	9,2 h	5,9	317	136	2.10 <sup>-3</sup>	6,8
<sup>85m</sup> Kr	4,36 h	1,65	140	60	3.10 <sup>-3</sup>	2,0
<sup>85</sup> Kr	9,4 a	0,38	33	13	4.10 <sup>-3</sup>	0,3
<sup>87</sup> Kr	1,3 h	3,5	296	127	6.10 <sup>-4</sup>	21,0
<sup>82</sup> Kr	2,8 h	5	425	181	3.10 <sup>-3</sup>	6,0
TOTAL			1 773	759		41,0

- 1 - Eléments.
- 2 - Périodes.
- 3 - Rendements de fission.
- 4 - Activité totale des gaz de fission dans une cartouche de 10 kg irradiée à saturation à 1 W/g.
- 5 - Activité des gaz de fission présents entre l'uranium et la gaine susceptibles d'être libérés lors d'une rupture de gaine. Cette activité est due aux fissions produites en surface dans une épaisseur de 3  $\mu$  d'uranium (détermination expérimentale effectuée à la pile de Saclay). (Diamètre de la cartouche : 26 mm).
- 6 - Concentrations maxima admissibles pour des durées d'exposition de 24 h/24.
- 7 - Volume d'air susceptible d'être contaminé à la concentration maximum admissible par les gaz de fission libérés par la rupture de la gaine d'une cartouche.

Le volume d'air susceptible d'être contaminé par la totalité des gaz de fission est :  $4,1 \cdot 10^5 \text{ m}^3$ .

Dans le cas d'une pile à haut flux de  $10^{14} \text{ n/cm}^2/\text{s}$  (30 W/g), une telle cartouche peut contaminer, par ses gaz de fission, un volume de  $10^7 \text{ m}^3$ .

#### B - DANGERS DU THORIUM IRRADIE DANS UNE PILE A URANIUM.

Une étude des  $\gamma$  analogue à celle effectuée pour l'uranium [7] permet de conclure que les intensités d'ionisation produites par des échantillons non protégés d'uranium et de thorium sont du même ordre ; par contre, les rayonnements de 1,5 et 2,5 MeV sont environ 40 fois moins intenses pour le thorium (la comparaison étant faite après plusieurs jours de désactivation). (Voir fig. 5).

D'autre part, les gaz de fission sont ici produits en très faible quantité et présentent un danger qui est environ 2 000 fois plus faible que pour l'uranium.

Les gaz de fission produits [4], [5] sont  $^{83\text{m}}\text{Kr}$  et  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  de périodes respectives 108 mn et 12 j.

#### C - DANGERS DES FLUIDES DE REFROIDISSEMENT.

##### 1 - Refroidissement par une circulation d'air en circuit ouvert à une pression voisine de la pression atmosphérique.

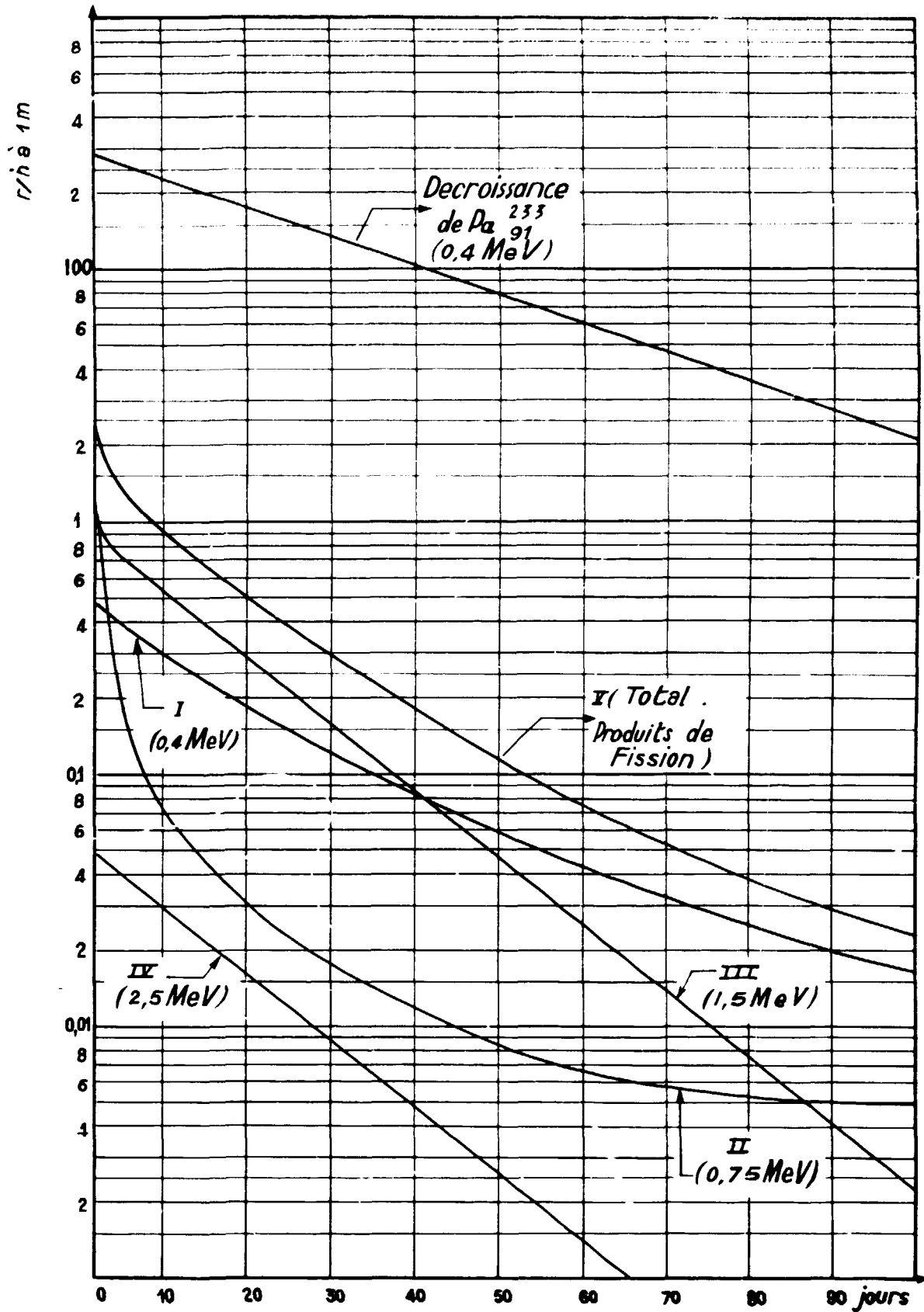
###### 1-1) Activation de l'air.

L'activation la plus importante est celle de l'argon-40.

On obtient  $^{41}\text{A}$  par la réaction  $^{40}_{18}\text{A} (\text{n}, \gamma) ^{41}_{18}\text{A}$  de section efficace 0,6 barn.

Les caractéristiques de  $^{41}\text{A}$  sont :

- Période 1,8 h  $\lambda = 1,07 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$
- Energie  $\beta$  maximum 1,2 MeV



- FIG. 5 -

DECROISSANCE D'ACTIVITE  $\gamma$  DU THORIUM

1 Kg de Th<sup>232</sup> irradié à saturation à 1 W/g d'uranium naturel  
( $3,14 \cdot 10^{12}$  nth./cm<sup>2</sup>/s dans U)

- Energie  $\gamma$  1,35 MeV
- Concentration maximum admissible dans l'air  
pour la population .....  $5.10^{-8}$  C/m<sup>3</sup>.

Exemple d'activation de l'air (pile G1) :

Pour le refroidissement de la pile, l'air met 0,15 s pour traverser le milieu multiplicateur du réacteur où le flux moyen est :  $1,8.10^{12}$  n/cm<sup>2</sup>/s. Un mètre cube d'air contient 9,3 l d'argon-40 représentant une section efficace macroscopique de :

$$0,6.10^{-24} \cdot 6.10^{23} \cdot \frac{9,3}{22,4} = 0,15 \text{ cm}^2$$

Le nombre de noyaux d'argon-41 formés dans 1 m<sup>3</sup> d'air en 0,15 s est :

$$1,8.10^{12} \cdot 0,15 \cdot 0,15 = 0,40.10^{11}$$

L'activité en argon-41 par mètre cube d'air sortant de la pile est :

$$\frac{0,40.10^{11} \cdot 1,07.10^{-4}}{3,7.10^{10}} = \underline{1,2.10^{-4} \text{ C/m}^3}$$

Le débit d'air de refroidissement étant de 200 m<sup>3</sup>/s, l'activité rejetée par la cheminée est :  $2,4.10^{-2}$  C/s.

1-2) Protection réalisée par la cheminée.

a) En régime turbulent (cas général).

La concentration, au sol, sous le vent, peut être représentée approximativement par la formule de Sutton

$$X = \frac{2A}{\pi v c^2 d^{1,75}} \cdot e^{-h^2/c^2 d^{1,75}}$$

X = concentration, au sol, sous le vent

A = activité émise par la cheminée

h = hauteur de la cheminée

d = distance au pied de la cheminée

v = vitesse du vent

c = coefficient dû à la diffusion      c = 0,12 pour h = 25 m

0,10      50

0,09      75

0,08      100

Unités

C/m<sup>3</sup>

C/s

m

m

m/s

La fonction X passe par un maximum

$$X_{\max} = \frac{A}{v} \cdot \frac{0,234}{h^2}$$

pour

$$d_{\max} = \left(\frac{h}{c}\right)^{1,14}$$

Dans le cas étudié ( $h = 100$ ,  $A = 2,4 \cdot 10^{-2}$ ), ces expressions deviennent :

$$X_{\max} = \frac{2,4 \cdot 10^{-2}}{v} \cdot \frac{0,234}{10^4} \quad d_{\max} = \left(\frac{100}{0,08}\right)^{1,14}$$

$$\underline{v \cdot X_{\max} = 5 \cdot 10^{-7} \text{ C/m}^3}$$

$$\underline{d_{\max} = 3\,400 \text{ m}}$$

La valeur calculée ici pour  $X_{\max}$  ( $5 \cdot 10^{-7} \text{ C/m}^3$  pour  $v = 1 \text{ m/s}$ ) représente une limite supérieure car la formule de Sutton, en toute rigueur, est applicable au cas où le débit de la cheminée est très faible. Ici, le débit est déjà important et l'air sortant par la cheminée étant plus chaud que l'air à l'altitude de la cheminée, la hauteur effective de la cheminée est nettement supérieure à 100 m.

Remarque. Les relations établies à partir de la formule de Sutton sont expérimentalement vérifiées dans le cas d'une cheminée placée sur un terrain nu. Dans les cas réels, la présence de bâtiments ou d'arbres perturbent notablement les résultats théoriques. La distance du maximum peut facilement être réduite par un facteur 2 et la concentration maximum au sol n'est plus inversement proportionnelle à la vitesse du vent, surtout au-dessus de 10 m/s où l'influence du vent devient négligeable.

b) Régime d'inversion de température.

L'air sortant de la cheminée se dilue très lentement dans l'atmosphère, il constitue une "plume" qui peut se rapprocher plus ou moins du sol suivant le relief et qui constitue ici une source linéaire radioactive  $\gamma$ .

Pour un vent de vitesse  $v \text{ m/s}$ , l'activité pour 1 m de longueur de la plume (cas de G1) est :

$$\frac{2,4 \cdot 10^{-2}}{v} \text{ C}$$

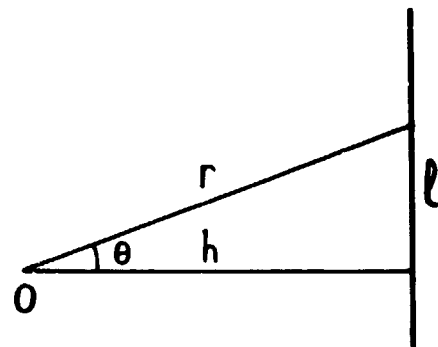
Cette activité  $\gamma$  (1,35 MeV) produit, dans le cas d'une source ponctuelle, à une distance de 1 m, une intensité d'ionisation

$$a = \frac{2,4 \cdot 10^{-2}}{v} \cdot 0,7 \text{ r/h}$$

$$a = \frac{1,7 \cdot 10^{-2}}{v} \text{ r/h}$$

Calculons l'intensité d'ionisation en un point O situé à une distance  $h$  de la plume :

A l'accroissement  $d\theta$  correspond un élément  $d\ell$  tel que  $d\ell \cdot \cos \theta = r \cdot d\theta$ . L'élément  $d\ell$  produit en O, en négligeant l'absorption par l'air (surestimation d'un facteur 2 environ), une intensité d'ionisation :



$$dA = \frac{ad\varrho}{r^2} \quad \text{ou} \quad dA = a \frac{d\theta}{r \cos\theta}$$

$$dA = \frac{a}{h} \cdot d\theta$$

$$A = \pi \frac{a}{h}$$

Application à la cheminée de G1 :

$$a = \frac{1,7 \cdot 10^{-2}}{v} \quad r/h$$

$$h = 100 \text{ m}$$

$$Av = \frac{\pi \cdot 1,7 \cdot 10^{-2}}{100}$$

$$Av = 5,35 \cdot 10^{-4} \text{ r/h}$$

$$\text{Si } v = 1 \text{ m/s}$$

$$A = 5,35 \cdot 10^{-4} \text{ r/h}$$

La limite maximum admissible pour la population est :

$$0,03 \text{ r/sem soit } 1,8 \cdot 10^{-4} \text{ r/h}$$

Il résulte de ces calculs que les dangers en régime turbulent ou en régime d'inversion de température sont du même ordre.

## 2 - Refroidissement par circulation de gaz sous pression en circuit fermé.

### 2-1) Étanchéité du circuit de refroidissement.

Un circuit de gaz sous pression n'est pas parfaitement étanche et il est nécessaire pour maintenir la pression constante d'alimenter le circuit en gaz neuf de façon continue.

Dans ces conditions, il s'échappe du circuit une quantité de gaz qui, par unité de temps, est une constante.

Désignons par  $f$  la fraction de gaz du circuit qui s'échappe par unité de temps.

Sur le volume  $V_0$  de gaz initialement introduit dans le circuit, il reste, après un temps  $t$  de fonctionnement, un volume  $V_t$  tel que :

$$dV_t = -fV_t \cdot dt$$

d'où

$$V_t = V_0 e^{-ft}$$

Après un temps  $T = \frac{0,693}{f}$ , le volume de gaz neuf qu'il aura fallu introduire dans le circuit pour maintenir la pression constante est :  $\frac{V_0}{2}$

Exemple .- Pour un circuit où la pression est de  $10 \text{ kg/cm}^2$ ,  $f$  est environ de  $0,5 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$

$$T = 14 \text{ j}$$

### 2-2) Activation d'un gaz dans le circuit.

Si un élément de gaz de refroidissement s'active dans la pile et donne un radioélément de constante radioactive  $\lambda$ , le nombre  $n$  de noyaux radioactifs formés après un temps de fonctionnement  $t$  de la pile est tel que :

$$dn = N \cdot F \cdot \phi \cdot \sigma \cdot dt - \lambda \cdot n \cdot dt - f \cdot n \cdot dt$$

où  $N$  = nombre de noyaux de l'élément qui s'active dans la pile,

$F$  = fraction du gaz de refroidissement circulant dans la zone active de la pile,

$\sigma$  = section efficace de la réaction d'activation,

$\phi$  = flux de neutrons dans la pile.

En intégrant :

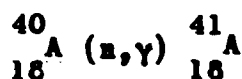
$$n = \frac{NF\phi\sigma}{\lambda+f} \cdot \left[ 1 - e^{-(\lambda+f)t} \right]$$

Si  $V$  est le volume T.P.N. du gaz du circuit, l'activité ( $a = \lambda n$ ) prise par 1  $\text{cm}^3$  T.P.N. du gaz du circuit est :

$$a = \frac{N}{V} \cdot \frac{F\phi}{3,7 \cdot 10^4} \cdot \frac{\sigma}{1+f/\lambda} \cdot \left[ 1 - e^{-(\lambda+f)t} \right] \mu\text{C/cm}^3$$

### 2-3) Refroidissement à l'azote.

L'azote utilisé contient toujours un peu d'argon-40, les réactions à considérer sont :



### - Activation en carbone-14

$$\sigma = 1,7 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$$



$$T = 5,5 \cdot 10^3 \text{ a} \quad \lambda = 4 \cdot 10^{-12} \text{ s}^{-1}$$

$$f = 0,5 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$$

d'où

$$a = \frac{6 \cdot 10^{23}}{11 \cdot 200} \cdot \frac{F\phi}{3,7 \cdot 10^4} \cdot \frac{1,7 \cdot 10^{-24}}{0,5 \cdot 10^{-6} / 4 \cdot 10^{-12}} \cdot [1 - e^{-0,5 \cdot 10^{-6} \cdot t}]$$

$$\underline{a = 2 \cdot 10^{-14} \cdot F \cdot \phi \cdot [1 - e^{-ft}] \text{ } \mu\text{C/cm}^3}$$

L'activité s'accroît avec une période de 14 j (fuite) et atteint la valeur limite :

$$a = 2 \cdot 10^{-14} \cdot F \cdot \phi \text{ } \mu\text{C/cm}^3$$

- Activation en argon-41

$$\sigma = 0,6 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$$

$$T = 1,8 \text{ h} \quad \lambda = 1,1 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$$

$$f = 0,5 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$$

Teneur du gaz en  $^{41}\text{A} = 10^{-4}$  en poids  
 ( $10^{-4} \cdot \frac{14}{40}$  en nombre de noyaux)

d'où

$$a = \frac{6 \cdot 10^{23}}{11 \cdot 200} \cdot 10^{-4} \cdot \frac{14}{40} \cdot \frac{F\phi}{3,7 \cdot 10^4} \cdot \frac{0,6 \cdot 10^{-24}}{1} \cdot [1 - e^{-\lambda t}]$$

$$\underline{a = 3,0 \cdot 10^{-14} \cdot F \cdot \phi \cdot [1 - e^{-\lambda t}] \text{ } \mu\text{C/cm}^3}$$

La constante  $f$  étant très inférieure à  $\lambda$ , la fuite n'intervient pas pour l'activation en argon-41.

- Exemple. (Pile de Saclay) :

$$F = 3 \cdot 10^{-2} \quad \phi = 3 \cdot 10^{12} \text{ n/cm}^2/\text{s}$$

Activité maximum de  $^{14}\text{C}$  :  $1,8 \cdot 10^{-3} \text{ } \mu\text{C/cm}^3$  (1 800 fois la concentration maximum admissible (3) )

Activité maximum de  $^{41}\text{A}$  :  $2,7 \cdot 10^{-3} \text{ } \mu\text{C/cm}^3$  (34 000 fois la concentration maximum admissible (3) )

(3) La concentration maximum admissible pour la population est :

$$10^{-6} \text{ } \mu\text{C/cm}^3 \text{ pour } ^{14}\text{C} - 5 \cdot 10^{-8} \text{ } \mu\text{C/cm}^3 \text{ , sur } ^{41}\text{A}$$

### 3 - Refroidissement par circulation d'eau lourde [8].

#### 3-1) Activité $\gamma$ .

L'activité  $\gamma$  de l'eau lourde, supposée sans impureté, provient essentiellement de la réaction



Caractéristiques de  $^{16}\text{N}$  :

Période = 7,4 s

Energie  $\gamma$  = 6,2 MeV (80 pour cent des désintégrations)

#### - Activité totale dans l'eau lourde

Tout neutron de fission ayant subi une diffusion sur un noyau de deutérium est perdu pour la réaction  $^{16}\text{O}(n,p) ^{16}\text{N}$  en raison du seuil élevé de la réaction (10 MeV).

Si  $Q$  = nombre de neutrons formés par seconde dans l'eau lourde ;  
 $S$  = section efficace moyenne macroscopique de 1 cm<sup>3</sup> d'eau lourde pour la réaction considérée et pour les neutrons de fission ;  
 $\lambda$  = libre parcours moyen des neutrons dans l'eau lourde.

Le nombre de noyaux d'azote-16 formés par seconde est :

$$\begin{aligned}n &= \lambda Q S \quad [8] \\ \lambda &= 16 \pm 2 \text{ cm} \\ Q &= 3,1 \cdot 10^{10} \cdot 2,5 \text{ neutrons par watt} \\ S &= 1,7 \cdot 10^{-29} \text{ cm}^2 \quad [8]\end{aligned}$$

A une puissance de 15 MW (EL3), l'activité d'azote-16 est de 290 C.

#### 3-2) Activité $\beta$ de longue période : tritium.

##### - Formation de tritium.

Le seul isotope qui, par irradiation de l'eau lourde, donne un radioélément de période longue (supérieure à 10 s) et d'activité appréciable est le deutérium.

Il se forme du tritium par la réaction



Section efficace de la réaction  $\sigma = 0,57 \text{ mb}$

Période du tritium = 12 a

Radioactivité du tritium =  $\beta$  19 keV

Parcours maximum dans la matière =  $7 \cdot 10^{-4} \text{ g/cm}^2$  soit 5 mm d'air ou 7  $\mu$  d'eau.

- Activité en tritium par centimètre cube d'eau lourde.

Section efficace de 1  $\text{cm}^3$  d'eau lourde :

$$6 \cdot 10^{23} \cdot \frac{1,11}{20} \cdot 2 \cdot 0,57 \cdot 10^{-27} = 3,8 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2$$

(1,11 densité de l'eau lourde).

Activité après l'irradiation à saturation :

$$\frac{3,8 \cdot 10^{-5}}{3,7 \cdot 10^{10}} \cdot \phi \cdot F \text{ C/cm}^3 \quad \text{ou} \quad \frac{1,0 \cdot 10^{-15}}{3,7 \cdot 10^{10}} \cdot \phi \cdot F \text{ C/cm}^3$$

$\phi$  : flux de neutrons dans la pile,

F : fraction de la quantité totale d'eau lourde irradiée dans la pile.

Activité après 1 an d'irradiation :

$$10^{-15} \cdot \phi \cdot F \cdot \frac{0,693}{12} = 6,0 \cdot 10^{-17} \cdot \phi \cdot F \text{ C/cm}^3$$

- Activité dans l'air

L'activité est déterminée pour une tension de vapeur d'eau lourde de 15 mm de mercure (tension de vapeur saturante à 20 °C)

Poids d'eau lourde dans 1  $\text{m}^3$  d'air :

$$\frac{15}{760} \cdot \frac{1\,000}{22,4} \cdot 20 = 13,1 \text{ g}$$

Activité de l'air contaminé par de l'eau lourde (irradiée 1 an) à la tension de vapeur saturante :

$$6 \cdot 10^{-17} \cdot \phi \cdot F \cdot \frac{13,1}{1,11} = \frac{7,1 \cdot 10^{-16}}{1,11} \cdot \phi \cdot F \text{ C/cm}^3$$

Exemple :  $\phi = 10^{14} \text{ n/cm}^2/\text{s}$        $F = 0,83$

La formule ci-dessus donne :  $5,9 \cdot 10^{-2} \text{ C/m}^3$

La concentration maximum admissible dans l'air est :  $10^{-5} \text{ C/m}^3$

La limite supérieure du danger est donc de  $5,9.10^3$  fois la valeur de la concentration maximum admissible.

Les manipulations d'eau lourde doivent donc être effectuées sous boîte à gants.

#### D - RADIOELEMENTS PRODUITS DANS LES PILES [9]

La table ci-dessous donne les caractéristiques des radioéléments (de périodes supérieures à 5 mn) obtenus par irradiation à saturation ( $A_{inf}$ ) de 1 g d'élément naturel dans un flux de neutrons thermiques de  $10^{10}$  n/cm<sup>2</sup>/s.

Dans le cas d'une irradiation de durée  $\theta$  suivie d'une durée de désactivation  $t$ , l'activité d'un radioélément de constante radioactive  $\lambda$  devient :

$$A_{\theta t} = A_{inf} (1 - e^{-\lambda\theta}) \cdot e^{-\lambda t}$$

Cette table permet de déterminer par un calcul très simple l'épaisseur de protection à prévoir avant l'extraction d'un radioélément. Les épaisseurs-moitié d'absorption dans le plomb indiquées ici sont relatives à une géométrie non canalisées ; elles sont obtenues par majoration de 20 pour cent des épaisseurs-moitié relatives à une géométrie canalisée. Il est ainsi tenu compte du "Build up Factor" à mieux que 10 pour cent.

Exemple 1 : 10 g d'aluminium sont irradiés durant 5 mn dans un flux de  $8.10^{12}$  n/cm<sup>2</sup>/s. Quelle est l'épaisseur de plomb nécessaire pour ne pas dépasser l'intensité de 60 mr/8 h à 1 m de l'échantillon, 2 mn après la fin de l'irradiation?

L'activité  $\gamma$  de l'échantillon 2 mn après la fin de l'irradiation est :

$$A = 10 \cdot 8.10^{12} \cdot 8,4 \cdot (1 - e^{-0,7.5/2,3}) \cdot e^{-0,7.2/2,3} \text{ mr/8h à 1 m}$$

$$A = \underline{2,2.10^4 \text{ mr/8h à 1 m}}$$

$$2,2.10^4 = 60 \cdot 2^{8,5}$$

L'épaisseur-moitié étant 15,6 mm, l'épaisseur de plomb nécessaire est :

$$15,6 \cdot 8,5 = \underline{133 \text{ mm}}$$

Exemple 2 : 10 g d'Iridium sont irradiés durant 10 h dans un flux de  $3.10^{13}$  n/cm<sup>2</sup>/s. Quelle est l'épaisseur de plomb nécessaire pour ne pas dépasser 60 mr/8h à 1 m de l'échantillon 5 h après la fin de l'irradiation ?

La durée d'activation étant très faible devant la période 70 j de l'iridium-192, seul l'iridium-194 est à considérer.

L'activité  $\gamma$  de l'échantillon 5 h après la fin de l'irradiation est :

$$A = 10 \cdot 3 \cdot 10^3 \cdot 500 \cdot (1 - e^{-0,7 \cdot 10 / 19}) \cdot e^{-0,7 \cdot 5 / 19}$$

$$\underline{A = 0,445 \cdot 10^7 \text{ mr/8h à 1 m}}$$

L'iridium-192 émet deux  $\gamma$  dont l'un est très rapidement absorbé. L'activité  $\gamma$  de 1,4 MeV est prépondérante pour la détermination de la protection et :

$$0,445 \cdot 10^7 \cdot \frac{382}{500} = 60 \cdot 2^{14,0}$$

L'épaisseur de plomb nécessaire est :

$$13,8 \cdot 14 = 193 \text{ mm}$$

Remarque. Dans les cas plus complexes où il est nécessaire de tenir compte de plusieurs énergies  $\gamma$ , l'épaisseur de protection est rapidement déterminée par approximations successives.

TABLE des RADIOELEMENTS

Elément	Période	Activité <sup>(4)</sup> mC	Energie $\gamma$ MeV	Intensité d'ionisation mr/8h à 1m <sup>(4)</sup>	Epaisseur moitié mm Pb
24 11 Na	14,9 h	4,1	2,8 1,4	36,2 23,7 59,9	17,4 13,8
28 13 Al	2,3 mn	1,2	1,8	8,4	15,6
46 21 Sc	85 j	79,3	1,1 1,9	380,0 317,0 697,0	11,4 16,2
56 25 Mn	2,6 h	38,5	2,1 1,8 0,8	44,0 66,3 154,0 264,3	16,8 15,6 9,0
60 27 Co	5,3 a	104	1,2 1,3	520,0 575,0 1 095,0	12,0 13,2
64 29 Cu	12,8 h	4,9	1,3 0,5	0,3 4,6 4,9	13,8 4,5
65 30 Zn	250 j	0,6	1,1 0,5	1,4 0,1 1,5	11,4 4,5

(4) Pour 1 g d'élément naturel irradié à saturation dans un flux de  $10^{10}$  n/cm<sup>2</sup>/s.

Elément	Période	Activité <sup>(4)</sup> mC	Energie $\gamma$ MeV	Intensité d'ionisation mr/8h à 1m <sup>(4)</sup>	Epaisseur moitié mm Pb
<sup>72</sup> <sub>31</sub> Ga	14,25 h	3,2	0,6 0,8 1,0 1,6 1,9 2,2 2,5	2,9 12,0 1,5 0,8 1,9 6,9 8,2 <u>34,2</u>	6,0 9,0 11,4 15,0 16,2 16,8 17,4
<sup>76</sup> <sub>33</sub> As	26,8 h	9,1	0,6 1,2 1,8 2,2	3,9 4,7 6,0 4,9 <u>19,5</u>	5,4 12,6 15,6 16,8
<sup>82</sup> <sub>35</sub> Br	35,5 h	2,3	0,6 0,8 1,4 1,8	5,8 8,3 13,0 0,02 <u>27,12</u>	5,0 8,4 13,2 16,2
<sup>110</sup> <sub>47</sub> Ag	270 j	1,5	0,7 0,9 1,4 1,5 0,8	4,3 6,5 3,2 1,8 1,0 <u>16,8</u>	6,6 10,0 13,8 14,4 7,8
<sup>116</sup> <sub>49</sub> In	54 mn	200	0,1 0,4 1,1 1,3 1,5 2,1	2,9 94,0 514,0 804,0 210,0 378,0 <u>2 002,9</u>	0,3 3,2 10,8 13,2 14,4 16,8
<sup>121</sup> <sub>51</sub> Sb	2,8 j	5,2	0,6	13,5	5,4
<sup>124</sup> <sub>51</sub> Sb	60 j	1,4	0,7 2,1 0,6 0,7	1,7 0,6 3,8 6,6 <u>12,7</u>	7,0 16,2 6,0 15,6

(4)

Pour 1 g d'élément naturel irradié à saturation dans un flux de  $10^{10}$  n/cm<sup>2</sup>/s

Elément	Période	Activité <sup>(4)</sup> mC	Energie $\gamma$ MeV	Intensité d'ionisation mr/8h à 1m <sup>(4)</sup>	Epaisseur moitié mm Pb
134 55 Cs	2,3 a	31,9	0,6 0,8	110,1 115,0 <u>225,1</u>	6,0 8,4
140 57 La	40 h	9,9	0,1 0,3 0,5 0,8 1,6 2,5	3,4 1,7 7,1 22,6 62,0 2,5 <u>99,3</u>	0,1 2,2 4,2 8,4 15,0 17,4
192 77 Ir	70 j	337	0,1 0,2 0,3 0,5 0,6	0,37 12,7 393,1 106,3 12,9 <u>525,37</u>	0,3 0,7 1,9 4,0 5,8
194 77 Ir	19 h	66	1,4 0,4	382,0 118,5 <u>500,5</u>	13,8 3,0
193 78 Pt	4,83 j	0,98	1,5	6,0	14,4
198 79 Au	2,69 j	79	0,411	142	3,4

Elément	Période	Activité <sup>(4)</sup> mC	Energie $\alpha$ keV	Intensité d'ionisation mr/8h à 1m <sup>(4)</sup>	
71 32 Ge	11,4 j	0,23	9,8	2,1	

(4) Pour 1 g d'élément naturel irradié à saturation dans un flux de  $10^{10}$  n/cm<sup>2</sup>/s



DANGERS EN CAS D'ACCIDENT SURVENANT A UNE PILE EN FONCTIONNEMENT

L'accident à prendre en considération est celui qui a pour effet de brûler une partie de l'uranium de la pile et de répandre dans l'atmosphère du plutonium, des produits de fission et éventuellement de l'eau lourde.

Lors d'un tel accident, le danger est double :

- danger d'inhalation d'air contaminé par le plutonium et les produits de fission,
- danger d'irradiation  $\gamma$  par le sol contaminé.

A - DANGER DU A LA PRESENCE DANS L'AIR D'URANIUM IRRADIE.

1 - Concentration maximum admissible dans l'air.

Pour la population, la concentration maximum admissible d'un radioélément dans l'air (respiré de façon continue par le sujet) est celle qui conduit à produire dans l'organe critique (organe retenant sélectivement le radioélément considéré) une irradiation de 0,03 rem/sem.

La concentration maximum admissible pour la population [1] s'exprime par la relation :

$$X = 0,294 \cdot 10^{-11} \cdot \frac{m}{T_E \cdot f_a \cdot \sum E(RBE)N} \cdot \frac{1}{1 - e^{-0,693 \cdot 0/T_E}} \quad (1)$$

- où
- $X$  = activité maximum admissible dans l'air en  $\mu\text{C}/\text{cm}^3$  (ou  $\text{C}/\text{m}^3$ ),
  - $m$  = masse de l'organe critique, en grammes,
  - $T_E$  = période effective de décroissance de la radioactivité dans l'organe critique, en jours (5),
  - $f_a$  = fraction de l'activité totale inhalée, retenue dans l'organe critique.

$$\sum E(RBE)N =$$

- $E$  : énergie moyenne mise par désintégration sous forme de rayonnements  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ ,  $\bar{e}$ ,  $n_{th}$ ,  $n_r$ ,  $p$ .... en MeV.
- RBE : facteur d'efficacité biologique (relative biological effectiveness)

(5)

$$\lambda_E = \lambda_R + \lambda_B \quad \text{ou} \quad \frac{1}{T_E} = \frac{1}{T_R} + \frac{1}{T_B}$$

$T_R$  : période radioactive

$T_B$  : période biologique

- N : un coefficient d'hétérogénéité de dépôt dans l'organe critique. Lorsque le radioélément retenu dans l'organe critique n'est pas réparti de façon homogène, les doses reçues sont aussi plus fortes en certains points ; or, en ces points d'activité maximum, l'irradiation ne doit pas dépasser 0,03 rem/sem, d'où la nécessité de ce facteur N.

$\Theta$  = durée de présence dans l'atmosphère contaminée, en jours.

## 2 - Calcul de la dose intégrée subie en cas d'accident [10]

Nous désignerons par  $X_{inf}$  la concentration maximum admissible pour  $\Theta$  infini.

$X_{inf}$  correspond à une irradiation de l'organe critique de 0,03 rem/sem ou  $5.10^{-6}$  rem/s.

Si  $X_0$  est, pour un produit de fission donné, la contamination de l'air immédiatement après l'accident, l'intensité d'irradiation dans l'organe critique au temps  $\Theta$  après l'accident est :

$$I_{\Theta} = 5.10^{-6} \cdot \frac{X_0}{X_{inf}} \cdot (1 - e^{-\lambda_E \cdot \Theta}) \cdot e^{-\lambda_R \Theta}$$

$\lambda_E$  : constance de décroissance effective de la radiation dans l'organe critique,

$\lambda_R$  : constance radioactive.

Pour une durée  $\Theta$  de présence en atmosphère contaminée, suivie d'une durée  $t$  de présence en atmosphère non contaminée, la dose intégrée totale subie par l'organe critique est :

$$D_{\Theta t} = \int_0^{\Theta} I_{\Theta} d\Theta + \int_0^t I_{\Theta} \cdot e^{-\lambda_E t} \cdot dt$$

### Application

Calcul de l'irradiation subie par les os. Considérons le cas d'une contamination à raison de 1 g d'uranium par mètre cube d'air, après activation de l'uranium pendant 3 mois à une puissance de 30 W/g

pour  $\Theta = 1$  j

et  $t = 50$  j

Les doses subies sont indiquées dans le tableau ci-dessous :

<u>Radioisotope</u>	<u>Dose</u>
$^{89}\text{Sr}$	$0,8 \cdot 10^6$ rem
$^{90}\text{Sr+Y}$	$0,02 \cdot 10^6$ "
$^{91}\text{Y}$	$2,3 \cdot 10^6$ "
$^{140}\text{Ba+La}$	$3,1 \cdot 10^6$ "
$^{144}\text{Ce+Pr}$	$0,9 \cdot 10^6$ "
$^{239}\text{Pu}$	$0,01 \cdot 10^6$ "
TOTAL .....	$7,2 \cdot 10^6$

Il ressort de ce tableau que l'irradiation due au couple  $^{90}\text{Sr+Y}$  et au plutonium ne représente que 0,5 pour cent de l'irradiation totale.

La dose intégrée subie pendant un temps relativement court et considérée comme une irradiation unique ne doit pas dépasser 25 rem. Cette irradiation correspond, d'après ce qui précède, à une durée de présence de 1 jour en atmosphère contaminée par 4  $\mu\text{g}$  d'uranium par  $\text{m}^3$  d'air dans le cas d'uranium activé 3 mois à une puissance de 30 W/g.

## B - DANGER DÙ A LA CONTAMINATION DU SOL [11]

### 1 - Evaluation du danger d'un sol contaminé

- Irradiation  $\gamma$  - Une personne se trouvant sur un sol contaminé par 1 C  $\gamma$  de 0,7 MeV par  $\text{m}^2$  reçoit une irradiation d'environ 250 rem/j.

Pour un accident unique, la dose maximum admissible est de 25 rem reçus en quelques jours ou de 75 rem reçus en 1 an.

- Contamination des plantes comestibles ayant pour conséquence l'irradiation interne du corps par les produits de fission ingérés.

Contamination maximum admissible  $10^{-3}$  C/ $\text{m}^2$

- Contamination des herbages entraînant une contamination du lait.

Contamination maximum admissible  $10^{-4}$  C/ $\text{m}^2$

## 2 - Contamination du sol

Pour une activité relachée de 820 C, (activité d'une quantité d'uranium irradié durant 100 j dans une pile à une puissance de 1 kW <sup>(6)</sup> et ayant subi une désactivation de 1 j), la contamination du sol varie avec la distance au réacteur accidenté suivant les valeurs indiquées dans le tableau suivant :

Distance	m	8	40	80	170	570	1 900
Contamination	C/m <sup>2</sup>	4	0,2	5.10 <sup>-2</sup>	10 <sup>-2</sup>	10 <sup>-3</sup>	10 <sup>-4</sup>

Le tableau ci-dessus est relatif à une contamination ayant lieu par temps sec ; en cas de fortes pluies, le taux de contamination, à une distance donnée, sera 8 fois plus élevé. (La contamination, sera, par contre, plus faible aux grandes distances). Pour une contamination donnée du sol la distance sera plus élevée d'un facteur :

$$\begin{array}{ll} \sqrt{n} & \text{s'il y a n kW relachés} \\ 2,8 & \text{en cas de fortes pluies.} \end{array}$$

Il est à remarquer que le degré de contamination du sol est indépendant de la vitesse du vent dans la mesure où cette vitesse n'est pas trop faible devant la vitesse de chute des parcelles contaminantes.

Manuscrit reçu le 23 novembre 1955

---

(6) Pour la masse d'uranium considérée.

- BIBLIOGRAPHIE -

- [1] - International Commission on Radiological Protection, Copenhagen, 1953.
- [2] HEITLER W.  
- The quantum theory of radiation., 1954., 375.
- [3] MARINELLI L.D.  
- Nucleonics., April 1948., 58.
- [4] HOLLANDER J.M.  
- Table of isotopes., Reviews of Modern Physics., 25-469.
- [5] CORYELL., SUGARMAN.  
- Radiochemical Studies of the fission products P. 2004.
- [6] JOFFRE H.  
- Cours de Génie atomique du 22 février 1955.
- [7] FITOUSSI L.  
- Danger d'irradiation par le thorium ayant séjourné dans une pile à uranium - Rapport S.P.R. de mai 1955.
- [8] JOFFRE H.  
- Activation de l'eau lourde dans la pile EL3 - Rapport S.P.R. du 17 janvier 1955.
- [9] FITOUSSI L., JOFFRE H.  
- Tables des radioisotopes produits par irradiation aux neutrons thermiques - Rapport S.P.R. de janvier 1955.
- [10] JOFFRE H.  
- Dangers de l'uranium chaud - Rapport S.P.R., 10. mars 1955.
- [11] MARLEY W.G.  
- Communication faite au symposium tenu à Harwell les 23-24 et 25 mars 1955.

TABLE DES MATIERES

CHAPITRE I .-

	Page
Dose maximum admissible et correspondances d'unités .....	1

CHAPITRE II .-

Dangers des rayonnements auprès des piles en service normal .....	6
A - Dangers de l'uranium irradié .....	6
- Irradiation $\gamma$ .....	6
- Gaz de fission .....	8
B - Dangers du thorium irradié dans une pile à uranium .....	10
C - Fluides de refroidissement .....	10
- Activation de l'air et cheminée .....	10
- Activation des gaz sous pression .....	14
- Activation de l'eau lourde .....	17
D - Radioéléments produits dans les piles .....	19

CHAPITRE III .-

Dangers en cas d'accident survenant à une pile en fonctionnement .....	24
A - Contamination de l'air .....	24
B - Contamination du sol .....	26

**FIN**