

## Problèmes d'irradiation liés aux manipulations du "plutonium irradié"\*

G. PESCAYRE, L. PITON\*\*

(Manuscrit reçu le 15 décembre 1983)

### RÉSUMÉ

Après avoir rappelé sommairement les modes de formation et les caractéristiques nucléaires du plutonium irradié, les auteurs présentent les principaux paramètres qui contribuent à l'irradiation gamma et neutrons. Les méthodes classiques de confinement telles que les boîtes à gants ne présentent plus les garanties suffisantes pour les opérations, en regard de l'irradiation, sans apport de protections supplémentaires, de méthodes et procédures adaptées. Ces moyens de protection ont été développés et laissent apparaître leurs limites.

### ABSTRACT

Following a review of irradiated plutonium formation processes and their nuclear characteristics, the main parameters contributing to gamma and neutron irradiation are presented. Presently, the common containment methods such as glove boxes do not offer sufficient operational safety against irradiation without further protections and well-suited methods and procedures. Such protection means have been developed and their limits are stated.

### I. GÉNÉRALITÉS

Quand l'uranium a longtemps séjourné dans un réacteur, le plutonium extrait ne contient plus seulement l'isotope 239, mais également d'autres isotopes en proportions variables, selon le type de réacteur et le taux de combustion.

Ce plutonium est communément appelé "Pu irradié". L'enrichissement est surtout sensible en  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ , mais la présence de  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{236}\text{Pu}$  n'est pas exclue surtout dans les filières à uranium enrichi.

La présence des isotopes 238, 240 et 242 entraîne une sensible augmentation de l'irradiation neutronique et celle des isotopes 236, 238 et 241, un accroissement de l'irradiation  $\gamma$  en particulier par les descendants du  $^{241}\text{Pu}$  c'est-à-dire  $^{237}\text{U}$  et  $^{241}\text{Am}$ , ce dernier en proportions croissantes avec le vieillissement jusqu'à 70 ans environ.

\* Communication présentée aux Journées d'études SFRP "Plutonium et radio-protection", Saclay, 14-16 juin 1983.

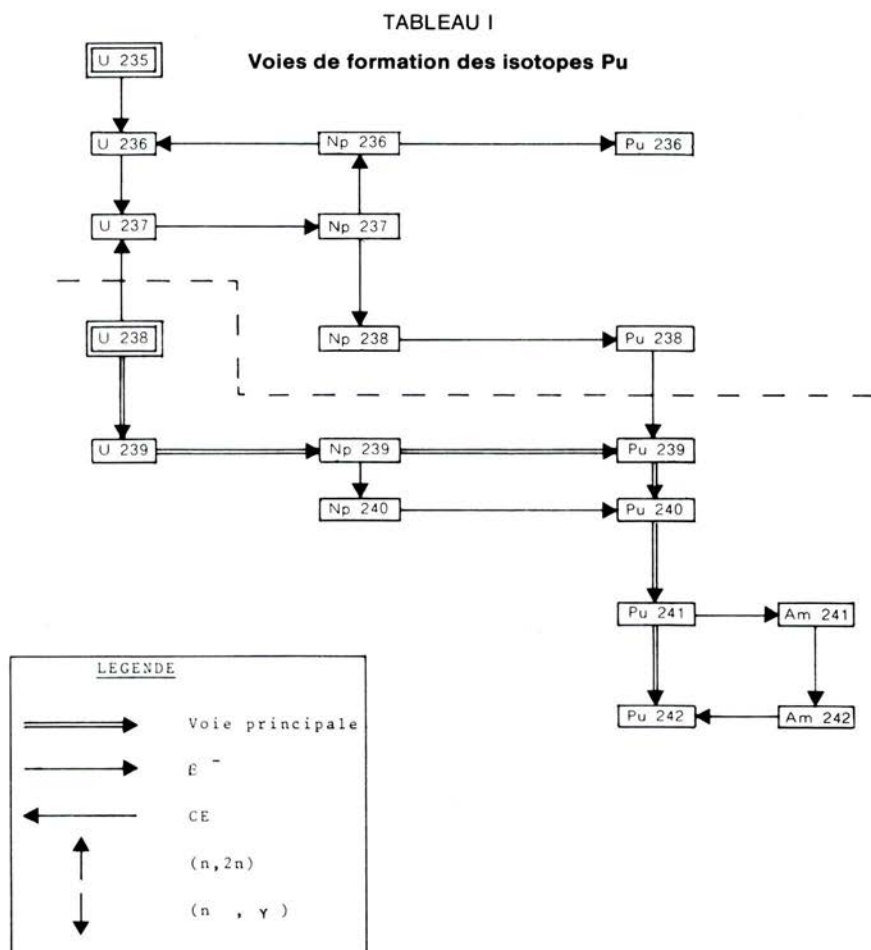
\*\* Commissariat à l'énergie atomique, Centre d'études de Valduc, Service de protection contre les rayonnements, BP 14, 21120 Is-sur-Tille.

Le but de cet exposé est de décrire les moyens de protection contre les rayonnements du Pu irradié après avoir sommairement rappelé les modes de formation du Pu, les principales caractéristiques nucléaires des isotopes et donné quelques types de compositions isotopiques.

## II. CARACTÉRISTIQUES DU PU IRRADIÉ

### II.1. Voies de formation (tableau I) [1, 2]

Les principales réactions sont indiquées. Après séparation, seuls subsistent les isotopes du Pu. Le tableau I met en évidence le rôle joué par l'uranium 235 dans la formation des isotopes 236 et 238.



## II.2. Propriétés radioactives des isotopes

Les principaux rayonnements sont mentionnés (annexe I a-b-c) [3 - 6].

Les  $\gamma$  d'énergie élevée, même en faible pourcentage, ne sont cependant pas à négliger, surtout quand les basses énergies ont été atténuées par les protections (gants, plexiglass, verre au plomb).

## II.3. Variations des compositions isotopiques

Plusieurs paramètres influent sur la composition isotopique du Pu irradié : l'enrichissement du combustible en  $^{235}\text{U}$ , le temps de séjour du combustible dans le réacteur, le type de réacteur (UNGG, REP, SURGÉNÉRATEUR (1)), le temps de refroidissement du combustible irradié avant son traitement.

Il est commode de caractériser le Pu irradié par sa teneur en  $^{240}\text{Pu}$ , à peu près constante dans le temps, on parlera d'un Pu à 8 %, 12 % (UNGG, REP.).

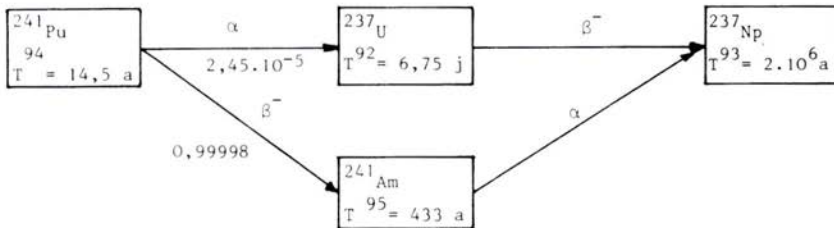
Ce chiffre permet d'estimer directement la composition isotopique et en particulier la teneur en  $^{241}\text{Pu}$ .

## III. ÉVOLUTION DE LA COMPOSITION ISOTOPIQUE DANS LE TEMPS

Du fait de leurs périodes élevées, les plutonium 239, 240 et 242 peuvent être considérés comme des composantes constantes de l'irradiation ; celle-ci est étroitement liée à l'évolution dans le temps des plutonium 238, 241 et 236 de périodes courtes ; ces deux derniers contribuent à l'accroissement dans le temps des rayonnements émis, en particulier le  $^{241}\text{Pu}$  par son descendant,  $^{241}\text{Am}$  ( $^{236}\text{Pu}$  est négligeable la plupart du temps).

### III.1. Evolution du plutonium 241

#### a. Schéma de décroissance



#### b. Evolution des descendants du $^{241}\text{Pu}$

L'uranium 237 est très rapidement en équilibre d'activité  $\alpha$  avec le plutonium 241 ( $\approx 65$  j après la séparation isotopique) puis décroît avec la même période que son père.

(1) UNGG : uranium naturel - graphite - gaz. REP : réacteur à eau sous pression.

TABLEAU II  
**Compositions isotopiques types pour REP et UNGG en % [6, 7]**

Type	REP (Enrichissement initial : 3,25 % en U5) [7] (Refroidissement : 1 an)								UNGG [6]				
	5000	10000	20000	30000	40000	50000	1000	2000	3000	4000	4500		
Taux combust. MW.J.T <sup>-1</sup>													
<sup>238</sup> Pu	0,05	0,16	0,57	1,26	2,2	3,13	2.10 <sup>-3</sup>	8.10 <sup>-3</sup>	2.10 <sup>-2</sup>	4.10 <sup>-2</sup>	6.10 <sup>-2</sup>		
<sup>239</sup> Pu	90	81,5	71,6	58,8	52	47	91	83	77	70	67		
<sup>240</sup> Pu	8,2	13	19,5	23,4	26	26,4	8	15	20	25	28		
<sup>241</sup> Pu	1,9	4,85	9,6	12,6	14,1	14,6	0,6	1,5	2,4	3,4	3,8		
<sup>242</sup> Pu	0,07	0,39	1,8	3,87	6,5	9,2	0,03	0,18	0,5	0,7	0,7		

L'américium 241 augmente régulièrement pendant 73 ans environ puis décroît avec sa période propre. C'est sa présence qui influe le plus sur l'évolution de l'irradiation de ce plutonium.

### III.2. Evolution des autres isotopes

a. *Le plutonium 238* engendre l'uranium 234 de période très longue et donc de faible activité. Son influence sur l'irradiation décroît donc dans le temps.

b. *Le plutonium 236* même à de faibles teneurs (de l'ordre du ppm) peut devenir gênant dans le temps du fait de sa période très courte et de la rapide montée de son petit-fils le thorium 228, en équilibre d'activité avec sa chaîne de filiation dont le thallium 208 qui émet un  $\gamma$  de 2,6 MeV à 36 % (de l'activité du thorium), cependant sa présence n'est décelée que dans le plutonium très fortement irradié.

## IV. ESTIMATIONS DES DÉBITS DE DOSES

### IV.1. Débits de dose $\dot{\gamma}$ (H)

On a pris une géométrie de référence, en l'occurrence un cylindre massif de plutonium en phase  $\delta$  ( $R = 4$  cm,  $h = 3,2$  cm) de masse approximative 2,5 kg. La composition isotopique *initiale* est supposée la suivante (en %) :

$^{238}\text{Pu}$  : 0 -  $^{239}\text{Pu}$  : 85,5 -  $^{240}\text{Pu}$  : 12,3  
 $^{241}\text{Pu}$  : 2 -  $^{242}\text{Pu}$  : 0,2 -  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{237}\text{U}$  : 0

Cette composition correspond à un taux de combustion :  
 $1000 \text{ MWJ.T}^{-1} < \tau < 2000 \text{ MWJ.T}^{-1}$  [8].

#### IV.1.a. Influence du vieillissement

La variation du débit de dose  $\dot{\gamma}$  est due d'une part à la diminution dans le temps du plutonium 238 (quand il est présent) du plutonium 241 et de son descendant  $^{237}\text{U}$  (en équilibre d'activité à partir de l'instant initial + 2 mois) mais surtout à l'accroissement de la teneur en  $^{241}\text{Am}$  fort émetteur  $\gamma$  (dont en particulier un  $\gamma$  de 60 keV à 36 %).

Le tableau III donne la dose totale  $\dot{\gamma}$  ainsi que la part en pourcentage de chaque isotope pour des temps de vieillissement  $< 100$  ans. Ce tableau a été dressé pour la qualité du plutonium définie plus haut avec la même géométrie et derrière des gants de boîtes à gants (BAG). La courbe 1 (annexe II) traduit les données du tableau III.



TABLEAU III

**Débits de dose  $\gamma$  (mrad.h<sup>-1</sup> ou 10<sup>-6</sup> Gy.h<sup>-1</sup>) derrière gant néoprène (0,6 mm), en fonction du vieillissement**  
 Les chiffres entre parenthèses indiquent la contribution en pourcentage de chaque isotope.

Age (ans) / Isotope	0	1	3	5	10	20	30	40	50	70	80	100
<sup>239</sup> Pu	526 (58)	526 (36,3)	526 (24,5)	526 (18,9)	526 (12,9)	526 (9)	526 (7,7)	526 (7,2)	526 (6,9)	526 (6,8)	527 (6,8)	527 (6,8)
<sup>240</sup> Pu	326 (36)	326 (22,5)	326 (15,2)	326 (11,7)	326 (8)	326 (5,6)	326 (4,8)	326 (4,4)	326 (4,3)	326 (4,2)	327 (4,2)	327 (4,2)
<sup>242</sup> Pu	0,04 —	0,04 —	0,04 —	0,04 —	0,04 —	0,04 —	0,04 —	0,04 —	0,04 —	0,04 —	0,04 —	0,04 —
<sup>241</sup> Pu	54,7 (6)	51,9 (3,6)	46,8 (2,2)	42,1 (1,5)	32,4 (0,8)	19,2 (0,3)	11,3 (0,17)	6,7 (0,1)	4 (0,05)	1,4 (0,02)	0,8 (0,01)	0,29 (0,004)
<sup>237</sup> U	0 (0)	152 (10,5)	137 (6,4)	123 (4,45)	95 (2,3)	56,2 (1)	33,2 (0,5)	19,7 (0,27)	11,6 (0,15)	4,07 (0,05)	2,4 (0,03)	0,84 (0,011)
<sup>241</sup> Am	0 (0)	391 (27)	1112 (51,8)	1759 (63,4)	3098 (76)	4887 (84)	5901 (86,8)	6458 (88)	6744 (88,6)	6906 (89)	6886 (89)	6762 (87,6)
TOTAL $\gamma$	906,5	1447	2147	2776	4078	5814	6798	7336	7613	7765	7742	7717

*IV.1.b. Variations en fonction des écrans*

Les écrans qu'on rencontre habituellement sont :

1. Les gants de BAG assimilés pour les calculs de protection à du néoprène de 0,6 mm d'épaisseur ;
2. Le plexiglass constituant la paroi de la BAG (épaisseur 0,8 cm) ;
3. Le verre au plomb (épaisseur 0,9 cm) équivalent à 0,2 cm de plomb + 0,7 cm de verre. En général, cet écran est juxtaposé au plexiglass.

Pour évaluer l'atténuation des écrans, on a pris un plutonium 12 % de 5 ans d'âge ( $\sim 4600$  ppm de  $^{241}\text{Am}$ ) dans la géométrie ci-dessus définie, les doses étant calculées au contact de l'écran. Les résultats figurent dans le tableau IV.

TABLEAU IV  
Atténuation par les écrans

Ecrans	Sans	Derrière gants	Derrière plexi (0,8 cm)	Derrière plexi + V au plomb (0,9 cm)
$\dot{H}$ (mrad.h <sup>-1</sup> ) (10 <sup>-5</sup> Gy.h <sup>-1</sup> )	5267	2776	1529	40,7
Atténuation	—	$\sim 1,9$	$\sim 3,5$	$\sim 130$

*Nota* — Ces facteurs d'atténuation varient avec la composition isotopique et donc avec le vieillissement.

*IV.1.c. Variations en fonction de l'épaisseur*

Etant donné les valeurs relativement peu élevées des énergies  $\gamma$  les coefficients d'autoabsorption dans le plutonium sont importants ; l'irradiation  $\gamma$  dépend donc surtout de l'épaisseur de la source émissive, jusqu'à une certaine valeur de cette épaisseur, au-delà de celle-ci les débits de dose  $\gamma$  restent constants pour une composition isotopique donnée.

La courbe 2 (annexe II) traduit l'influence de l'épaisseur de la couche émissive sur les débits de dose.

**IV.2. Débits de doses neutrons***a. Emissions de neutrons*

Les neutrons sont produits par trois processus : les fissions spontanées dans le plutonium ; les fissions provoquées (fonction du  $k_{\text{eff}}$ ) ; les réactions ( $\alpha, n$ ).

Les taux d'émission sont donc liés :

- à la **composition isotopique**, en particulier aux teneurs en  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  et  $^{242}\text{Pu}$ , forts émetteurs de neutrons par fissions spontanées,
- à la **forme chimique du plutonium** car la présence d'éléments légers provoque des réactions ( $\alpha$ , n). C'est surtout le cas pour les formes  $\text{PuO}_2$  et  $\text{PuF}_4$ , mais également pour les oxalates et les nitrates. Le rendement de ces réactions est d'autant plus élevé que les  $\alpha$  sont énergétiques ( $\alpha$  des  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  et chaîne du  $^{236}\text{Pu}$ ). Les tableaux V et VI indiquent les taux d'émission pour les trois formes généralement rencontrées : métal, dioxyde, fluorure [6].

a) Par isotope (tableau V)

TABLEAU V

**Emissions neutroniques des isotopes du plutonium**  
Fissions spontanées plus réactions ( $\alpha$ , n) en  $\text{n.g}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$  [6]

Isotope \ Forme	Métal	Oxyde	Fluorure
$^{238}\text{Pu}$	3400	$1,9 \cdot 10^4$	$4,7 \cdot 10^6$
$^{239}\text{Pu}$	$3 \cdot 10^{-2}$	42	$9,2 \cdot 10^3$
$^{240}\text{Pu}$	1400	1600	$3,5 \cdot 10^4$
$^{241}\text{Pu}$	—	2,3	380
$^{242}\text{Pu}$	2300	2300	2700
$^{241}\text{Am}$	0,5	3100 (1)	$9,5 \cdot 10^5$ (1)

(1) Ces valeurs ont été extrapolées des valeurs de  $^{238}\text{Pu}$  en supposant un rendement identique des réactions ( $\alpha$ , n) (énergies  $\alpha$  très voisines). Les valeurs du tableau sont, en général, les valeurs les plus pessimistes trouvées dans la littérature.

— Pour la composition isotopique définie plus haut

TABLEAU VI

**Emissions neutroniques pour le plutonium 12,5 %**

Forme	Métal	Dioxyde	Fluorure
$\text{n.g}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$	117	237	$1,2 \cdot 10^4$

Les taux d'émission sont constants dans le temps pour le plutonium métal. Pour les autres formes, ils sont légèrement croissants en raison de l'augmentation de  $^{241}\text{Am}$ .



**— au coefficient multiplication neutronique ( $k_{\text{eff}}$ )**

Les taux d'émission ci-dessus sont donnés pour un  $k_{\text{eff}} = 0$ . En réalité dans le cas où le  $k_{\text{eff}}$  n'est pas nul, ils sont à multiplier par le facteur  $\frac{p \times M \text{ (g)}}{1 - k_{\text{eff}}}$  pour avoir le nombre de neutrons contribuant à l'irradiation ( $p$  étant la probabilité de fuite,  $k_{\text{eff}}$  le coefficient de multiplication effectif de la source,  $M$  la masse en grammes).

*b) Passage aux débits d'équivalent de dose*

L'irradiation due aux neutrons est un effet de masse, car ils ne sont pratiquement pas atténués, ni dans le matériau, ni dans les écrans de faible épaisseur. Pour les besoins de la radioprotection, on admet en accord avec [6] la correspondance suivante, valable pour tous les neutrons émis, à savoir :  $1 \text{ n.s}^{-1} \text{ cm}^{-2} \rightarrow 0,115 \text{ mrem.h}^{-1}$  ( $1,15 \cdot 10^{-6} \text{ Sv.h}^{-1}$ ); à titre d'exemple, le cylindre défini ci-dessus donne à 30 cm un débit d'équivalent de dose de :

- 4,5 mrem.h<sup>-1</sup> ( $4,5 \cdot 10^{-5} \text{ Sv.h}^{-1}$ ) en métal
- 6 mrem.h<sup>-1</sup> ( $6 \cdot 10^{-5} \text{ Sv.h}^{-1}$ ) en oxyde
- 310 mrem.h<sup>-1</sup> ( $3,1 \cdot 10^{-3} \text{ Sv.h}^{-1}$ ) en PuF<sub>4</sub>

Ceci en supposant des géométries identiques.

**IV.3. Intérêt d'un programme de calcul**

Le nombre élevé de paramètres variables (isotopes, âge du plutonium, distances, géométries, écrans, forme chimique...) rendent les calculs manuels très longs et très complexes. La mise sur pied d'une méthode de calcul par ordinateur utilisant constamment les mêmes données (périodes, rayonnements émis, pourcentages d'émission, coefficients d'atténuation...) et adaptée aux géométries les plus courantes permet une standardisation des résultats et un gain de temps très appréciable.

Les comparaisons et les évolutions des doses s'en trouvent facilitées, ce qui est très utile, en particulier dans les études de protection ou de prévention. Une application en a été faite. Elle permet de traiter différentes géométries classiques, les formes chimiques (métal, dioxyde, fluorure, solutions), les principaux écrans (U, Pu, Pb, verre, Fe, polyéthylène plexi, Al, PVC, air, F, néoprène, H<sub>2</sub>O...), le temps de vieillissement, les distances, prise en compte jusqu'à 10 isotopes différents.

Le tableau VII donne un exemple des résultats fournis par ce programme.

**V. PROTECTION RADIOLOGIQUE DU PU IRRADIÉ****V.1. Protection contre la contamination**

Les techniques de protection contre la contamination par le plutonium irradié sont les mêmes que dans le cas du plutonium ordinaire. Il faut, cependant, noter que <sup>238</sup>Pu et <sup>241</sup>Am, d'activité spécifique élevée, influent

TABLEAU VII

## Spécimen de sorties de résultats

Ecrans

Epaisseur = .80000001F + 00 Nature Plex. Forme plan densité = .11999998E + 01  
 Epaisseur = .69999999F + 00 Nature verre Forme plan densité = .25000000E + 01  
 Epaisseur = .19999999E + 00 Nature Pb Forme plan densité = .11300000E + 02  
 Keff = 4800  
 P fuite = 8400

Energie	Débit de dose mrem/heure ( $10^{-5}$ .Sv.h $^{-1}$ )							Total / E
	<sup>238</sup> Pu	<sup>239</sup> Pu	<sup>240</sup> Pu	<sup>241</sup> Pu	<sup>241</sup> Am	<sup>237</sup> U	<sup>242</sup> Pu	
15.	.0000E + 00	.0000E + 00	.0000E + 00	.0000E + 00	.0000E + 00	.0000E + 00	.0000E + 00	.0000E + 00
30.	.0000E + 00	.4965E - 33	.0000E + 00	.0000E + 00	.0000E + 00	.1345E - 33	.0000E + 00	.6310E - 33
50.	.0000E + 00	.1499E - 09	.1599E - 09	.2244E - 11	.4272E - 07	.2128E - 09	.0000E + 00	.4324E - 07
70.	.0000E + 00	.2208E - 05	.0000E + 00	.1522E - 05	.5604E - 06	.1806E - 05	.0000E + 00	.6096E - 05
95.	.0000E + 00	.5619E - 06	.1951E - 06	.1616E - 05	.3885E - 06	.2030E - 05	.0000E + 00	.4792E - 05
115.	.0000E + 00	.7252E - 05	.4544E - 07	.1466E - 04	.2978E - 06	.5728E - 05	.0000E + 00	.2798E - 04
130.	.0000E + 00	.3209E - 04	.0000E + 00	.1627E - 06	.4479E - 05	.0000E + 00	.0000E + 00	.3673E - 04
170.	.0000E + 00	.6484E - 04	.2017E - 04	.6437E - 03	.1331E - 04	.1598E - 03	.0000E + 00	.9018E - 03
220.	.0000E + 00	.1468E - 02	.0000E + 00	.0000E + 00	.3579E - 03	.5069E - 01	.0000E + 00	.5252E - 01
270.	.0000E + 00	.3031E - 02	.0000E + 00	.0000E + 00	.1523E - 03	.9922E - 02	.0000E + 00	.1311E - 01
325.	.0000E + 00	.5320E - 01	.0000E + 00	.0000E + 00	.6986E - 02	.4688E - 01	.0000E + 00	.1060E + 00
375.	.0000E + 00	.2241E + 00	.0000E + 00	.0000E + 00	.5898E - 02	.8541E - 02	.0000E + 00	.2386E + 00
425.	.0000E + 00	.2126E + 00	.0000E + 00	.0000E + 00	.1329E - 02	.0000E + 00	.0000E + 00	.2139E + 00
475.	.0000E + 00	.3853E - 01	.0000E + 00	.0000E + 00	.6081E - 03	.0000E + 00	.0000E + 00	.3914E - 01
600.	.0000E + 00	.2509E - 01	.4311E - 02	.0000E + 00	.3954E - 01	.0000E + 00	.0000E + 00	.6895E - 01
750.	.0000E + 00	.1817E - 01	.0000E + 00	.0000E + 00	.3280E - 01	.0000E + 00	.0000E + 00	.5098E - 01
900.	.0000E + 00	.1243E - 02	.0000E + 00	.0000E + 00	.2850E - 03	.0000E + 00	.0000E + 00	.1529E - 02
Total/Isot.	.0000E + 00	.5775E + 00	.4331E - 02	.6617E - 03	.8699E - 01	.1162E + 00	.0000E + 00	.7887E + 00
								.0000E + 00
Débit de dose neutron								= .65432272E + 01
Débit de dose gamma								= .78569174E + 00
Débit de dose total								= .73289185E + 01

sur la détection de la contamination et exigent, lors des manipulations, une attention et un contrôle accrus de la propreté des enceintes et des gants.

## V.2. Protection contre l'irradiation

Les paramètres qui contribuent à l'irradiation ont été développés dans les paragraphes précédents. Sur un plan pratique, les manipulations de ce plutonium sont liées : à la composition isotopique du plutonium et à la teneur initiale en  $^{241}\text{Am}$ , à l'âge de ce plutonium, à la nature des postes de travail (structures des équipements et temps de présence), aux écrans.

### V.2.1. Travail en BAG

#### A. Protection contre l'irradiation

##### a. Conception des enceintes

*L'enceinte élémentaire est la BAG en dépression. Le confinement est assuré par la paroi : en général du plexiglass (0,8 cm) avec des ouvertures pour les gants. Aux parois peuvent venir s'accoler des panneaux, fixes ou mobiles, de verres au plomb correspondant à environ 0,7 cm de verre et 0,2 cm de plomb. Pour des plutonium faiblement irradiants ( $\leq$  à 12 % de  $^{240}\text{Pu}$ ) cette double paroi constitue un écran efficace contre les  $\gamma$ .*

Il y a lieu, cependant, de considérer que cette protection est affaiblie par les ouvertures pour le passage des gants. Ces ouvertures, qui doivent être d'un diamètre assez grand pour pouvoir réaliser les changements de gants, sont des causes de fuites de rayonnements. Si l'on veut tendre vers une protection homogène, des protections complémentaires deviennent nécessaires. Ce sont des opercules de modèles variés qui joueront ce rôle (fig. 1). Les surfaces intérieures seront facilement nettoyables en évitant tout ce qui peut favoriser l'accumulation de particules de plutonium.

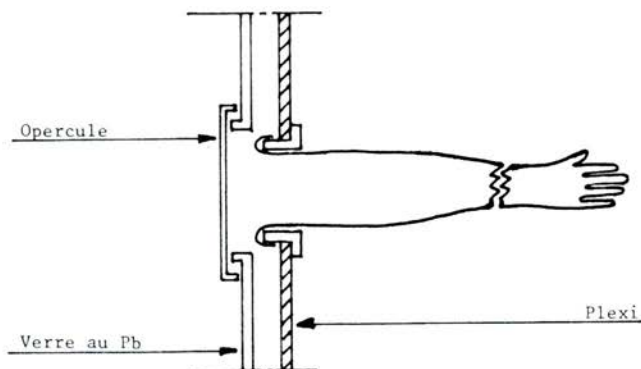


Fig. 1.



## **Gants**

On a vu que les irradiations sont très importantes avec des gants classiques. L'utilisation de gants au plomb apporterait un facteur d'atténuation de 6 environ (Pu à 3000 ppm de  $^{241}\text{Am}$ ) pour des gants équivalents à 0,06 mm de plomb environ. Mais, compte tenu de la souplesse manuelle exigée pour la plupart des opérations en BAG, leur utilisation contribue à allonger les temps d'exposition et donc à augmenter les doses reçues. Leur emploi doit être bien étudié.

### *b. Conception des équipements*

Les plans de travail et l'outillage intérieur doivent être facilement nettoyables. On utilise des protections mobiles intérieures destinées à isoler les matériaux irradiants en dehors des manipulations (conteneurs en plomb).

Les matières radioactives sont stockées, en dehors des opérations, le plus loin possible des zones de travail.

Dans la mesure du possible, on adopte des équipements spécialisés comme, par exemple, des rails de transfert automatisés, des commandes à distance (chargement et déchargement de fours, tours à télécommande).

### *c. Procédures de travail*

La mise en place des moyens de protection les plus appropriés ne peut être entièrement efficace sans le concours personnel des agents d'exploitation. Ceci suppose :

- une information préalable adéquate de ces agents mettant en évidence la nécessité du port permanent de tous les moyens individuels de contrôles (stylos-films, contrôles personnels), la prise de conscience des risques d'irradiation, la mise en œuvre des moyens de protection des équipements (mise en place des blindages mobiles ou partiels), la limitation au plus juste des temps d'exposition nécessaires (pas de présence inutile en cellule) car, même pour les BAG protégées, les temps de présence en cellule entraînent des doses cumulées non négligeables et sans rapport avec les besoins des opérations ;
- le respect des consignes de travail ;
- le suivi dosimétrique régulier (au minimum journalier pour une meilleure connaissance des postes de travail, ceci en liaison avec le service de protection contre les rayonnements, en vue d'établir des bilans dosimétriques par cellule ou par groupe de référence).

## **Aspect matériel**

Il faut insister sur le nettoyage des surfaces et équipements internes, l'évacuation fréquente des déchets et de l'outillage contaminé, la fréquence des changements de gants dont l'irradiation résiduelle est élevée.

Quelques chiffres soulignent ces nécessités.

Sur une BAG de fusion par four à arc, on a relevé (mesures faites avec une chambre d'ionisation type CET 0,5 d'épaisseur de paroi : 300 mg.cm<sup>-2</sup>) sur :

- gant : 160 mrad.h<sup>-1</sup> (1,6.10<sup>-3</sup> Gy.h<sup>-1</sup>) ;
- pinceau de balayage : 125 mrad.h<sup>-1</sup> (1,25.10<sup>-3</sup> Gy.h<sup>-1</sup>) ;
- conteneur interne : 115 mrad.h<sup>-1</sup> (1,15.10<sup>-3</sup> Gy.h<sup>-1</sup>) ;
- panneau plexiglass : 22 mrad.h<sup>-1</sup> (2,2.10<sup>-4</sup> Gy.h<sup>-1</sup>) ;
- ambiance derrière verre au plomb : 4 mrad.h<sup>-1</sup> (4.10<sup>-5</sup> Gy.h<sup>-1</sup>).

## B. Protection contre l'irradiation neutronique

On a vu que l'irradiation neutronique est surtout un effet de masse. En conséquence, les moyens de protection sont réservés aux postes de travail où l'on manipule et où l'on stocke des quantités importantes de plutonium. Ils consistent à la mise en place (fixe ou mobile) d'écrans en polyéthylène, d'épaisseur parfois importante, ce qui ne peut se concevoir que sur les chaînes de manipulation automatisées et après une étude de prévention des risques au niveau de la conception des installations.

### V.2.2. Limitation du travail en BAG

#### A. Limitation par les $\gamma$

Les protections contre les  $\gamma$  sont plus efficaces contre l'irradiation de l'organisme entier que des extrémités, du fait de la relative facilité de mise en place de panneaux de verre au plomb par rapport à l'utilisation de gants au plomb.

Le tableau VIII donne le rapport des débits de dose  $\gamma$  et ( $\gamma + \sigma'n$ ) au contact des gants et à 30 cm pour un lingot à 12 % de <sup>240</sup>Pu.

TABLEAU VIII

**Rapport de dose  $\gamma$  et ( $\gamma + \sigma'n$ ) au contact de gants et à 30 cm derrière verre au plomb, en fonction du vieillissement (mrem.h<sup>-1</sup> ou 10<sup>-5</sup> Sv.h<sup>-1</sup>)**

t = ans	0		3		5		10	
	$\gamma$	$\gamma + n$	$\gamma$	$\gamma + n$	$\gamma$	$\gamma + n$	$\gamma$	$\gamma + n$
(1) Au contact gant	906	1910	2147	3152	2775	3780	4080	5080
(2) A 30 cm derrière verre au Pb	0,6	7,1	0,8	7,3	0,84	7,4	0,9	7,5
(1) / (2)	1510	268	2680	430	3300	510	4440	680
ppm.Am	0		2910		4600		8110	

Du tableau VIII, on pourrait déduire que ce sont les doses aux extrémités qui limitent le travail en BAG. Ceci reste vrai pour certaines opérations spéciales qui exigent des temps de manipulations élevés. En pratique, on constate que les temps d'exposition des extrémités sont nettement réduits



par rapport aux temps de présence autour des BAG et qu'en définitive, c'est la dose organisme entier qui sera la plus pénalisante : ceci s'explique par le fait que le produit "débit de dose faible  $\times$  temps d'exposition élevés" peut entraîner des doses mensuelles, trimestrielles ou annuelles relativement élevées.

Pour des opérations données, acceptables jusqu'à une certaine teneur en  $^{241}\text{Am}$ , le passage à une autre composition isotopique (augmentation de la teneur en  $^{241}\text{Pu}$ ) donnera également une limite dictée par cette teneur.

L'expérience et les résultats semblent montrer que pour des opérations simples de métallurgie ou de chimie, cette limite se situe aux alentours de 6000 à 8000 ppm de  $^{241}\text{Am}$ .

L'augmentation de la teneur en plomb n'apporte guère d'amélioration car, pratiquement, tous les rayonnements de faible et moyenne énergie sont déjà arrêtés. Elle pourrait, en outre, remettre en cause les structures mécaniques des enceintes de confinement du type BAG.

## B. Limitation par les neutrons

On a vu précédemment l'importance des doses neutrons lorsque l'on est en présence de quantités importantes, surtout de  $\text{PuF}_4$ . On ne peut espérer améliorer les protections neutroniques sans remettre en question le travail en BAG classique. Seule, la distance apportera une diminution des débits d'équivalent de dose au niveau de l'organisme entier. Le problème de l'irradiation des extrémités reste entier et, seules, la protection intégrée et l'automatisation le résolvent.

## C. Dépassement des limites

Lorsque les teneurs en  $^{241}\text{Am}$  dépassent les limites ci-avant mentionnées (6000 à 8000 ppm) on est amené à envisager d'autres méthodes :

- automatisation plus poussée des opérations avec éventuellement, des télémanipulateurs, afin de diminuer les doses au contact qui deviennent très prépondérantes ;
- séparation de  $^{241}\text{Am}$  : quand le travail en BAG ne peut plus se faire normalement, il faut extraire l'américium afin de rendre le plutonium réutilisable ; après extraction, le  $^{241}\text{Pu}$  (et le  $^{237}\text{U}$  qui lui est associé) n'ont plus que de faibles teneurs et l'américium 241 ne croît que beaucoup plus lentement.

Cette opération exige des installations spécialisées, hautement blindées et automatisées, car les risques d'irradiation y sont élevés surtout dans les phases oxalate, fluorure et oxyde d'américium qui présentent, en plus des risques  $\gamma$ , des risques neutrons par suite d'un taux de réactions ( $\alpha$ , n) important.

### V.2.3. Suivi dosimétrique

#### A. Dosimétrie $\gamma$

Les opérations sur Pu irradié imposent un suivi dosimétrique du personnel tant au niveau de l'organisme entier que des extrémités. Cette dosimétrie consiste actuellement à attribuer aux opérateurs :

- pour l'organisme entier : le film dosimètre, le stylo dosimètre ;
- pour les extrémités : le film poignet, la bague FLi.

A la surveillance individuelle vient s'ajouter une surveillance collective par chambres d'ionisation reliées à un tableau de contrôle des rayonnements et par films dosimètres à poste fixe auprès des BAG.

#### B. Dosimétrie des neutrons

Le personnel exposé aux nuisances mixtes ( $n + \gamma$ ) est porteur d'une émulsion NR (neutrons rapides) incorporée dans le boîtier PS1.

En raison du fond  $\gamma$  élevé et des limites d'utilisation de cette émulsion, une dosimétrie complémentaire (dosimètres albédo au  $^6\text{Li}$  et  $^7\text{Li}$ ) est mise en place, en particulier pour les postes PuF4, qui sont actuellement les plus pénalisants vis-à-vis de l'irradiation neutronique.

#### C. Exploitation des relevés dosimétriques

Elle se fait à divers niveaux :

- ils servent, en plus de suivi individuel de chaque opérateur, aux études préventives des postes de travail et à l'optimisation des temps d'exposition ;
- ils permettent de dresser des bilans périodiques pour des groupes de référence constitués, afin de relier les doses reçues à des unités d'œuvre et de tirer ainsi des renseignements en vue d'évolutions prévisibles des matériaux et des technologies.

## VI. CONCLUSIONS

Compte tenu du mode de formation du plutonium, la présence d'autres isotopes que le  $^{239}\text{Pu}$  est à prendre en considération lorsqu'on manipule du plutonium.

Cet exposé s'est volontairement limité à la présentation des problèmes d'irradiation résultants de ce plutonium faiblement irradié et qui, même à ce niveau, présente des risques d'irradiation assez importants pour des manipulations directes. Les méthodes classiques de confinement telles que BAG, ne présentent plus les garanties suffisantes pour les opérations, en regard de l'irradiation, sans apport de protections supplémentaires, de méthodes et procédures adaptées. Ces moyens de protection ont été développés et laissent apparaître leurs limites.

Les moyens dosimétriques mis en œuvre ont été précisés en soulignant les difficultés rencontrées actuellement dans la dosimétrie individuelle des neutrons.

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] TALMONT X. Problèmes liés à la radioactivité  $\alpha$  due aux isotopes mineurs légers de U et Pu formés dans le combustible eau légère ( $^{232}\text{U}$ ,  $^{236}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ). Note technique NT LH/P n° 3, 1973.
- [2] FOURCADE - CANCELLE N. Composition isotopique, activité massique et concentration maximale admissible dans l'air du plutonium extrait de l'uranium irradié. Note CEA-N-1127, 1969.
- [3] Commissariat à l'énergie atomique. Plutonium et autres transuraniens - guide de protection et sécurité. Fontenay-aux-Roses : CEA, 1977.
- [4] GUNNINK et al. A reevaluation of the  $\gamma$  - ray energies and absolute branching intensities of  $^{237}\text{U}$ ,  $^{238-239-240-241}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$ . UCRL - 52139, 1976.
- [5] ERDTMANN G., SOYKA W. The  $\gamma$ -ray lines of radionuclides ordered by atomic and mass number. J. Radioanal. Chem., 1975, **26**, 375-495.
- [6] GOUGUET J. Evaluation des débits d'équivalent de dose dus aux neutrons issus du Pu métal,  $\text{PuO}_2$ - $\text{PuF}_4$ . Rapport CEA-R-4399, 1973.
- [7] GOUGUET J. Evaluation des débits d'équivalent de dose dus aux neutrons issus de sources de  $\text{PuO}_2$  - abaques. Rapport CEA-R-4666, 1975.

## ANNEXE I

## Propriétés radioactives des isotopes du plutonium

Isotope	Période radioactive	Rayonnements émis			Emissions de neutrons ( $\text{n.g}^{-1}.\text{s}^{-1}$ )			Filiation
		Type	Ener.MeV	%	Fissions Spontan.	Réactions ( $\alpha$ , n)		
						$\text{PuO}_2$	$\text{PuF}_4$	
$^{238}\text{Pu}$	87,75 ans	$\alpha$	5,46	28	3400	$1,5.10^4$	$4,7.10^6$	$^{234}\text{U}$
		$\alpha$	5,5	72				
		$\gamma$	0,017	13				
		$\gamma$	0,044	$3,9.10^{-2}$				
		$\gamma$	0,100	$8.10^{-3}$				
$\gamma$	0,150	$1.10^{-3}$						
$^{239}\text{Pu}$	24400 ans	$\alpha$	5,147	72,5	$3.10^{-2}$	42	9200	$^{235}\text{U}$
		$\alpha$	5,134	16,8				
		$\alpha$	5,095	10,7				
		$\gamma$	0,017	5,9				
		$\gamma$	0,030	$7,9.10^{-3}$				
		$\gamma$	0,050	$2,25.10^{-2}$				
		$\gamma$	0,100	$1,5.10^{-3}$				
		$\gamma$	0,130	$6,3.10^{-3}$				
		$\gamma$	0,400	$6.10^{-3}$				
$^{240}\text{Pu}$	6600 ans	$\alpha$	5,162	76	1400	150	$3,36.10^4$	$^{236}\text{U}$
		$\alpha$	5,118	24				
		$\gamma$	0,017	10				
		$\gamma$	0,044	$4,5.10^{-2}$				
		$\gamma$	0,100	$7.10^{-3}$				
		$\gamma$	0,100	$7.10^{-3}$				
$^{241}\text{Pu}$	14,5 ans	$\beta^-$	0,02	99,9975	2,3	380	$^{241}\text{Am}$ $^{237}\text{U}$	
		$\alpha$	4,9	$2,45.10^{-3}$				
		$\alpha$	0,095	$9.10^{-4}$				
		$\alpha$	0,115	$3,3.10^{-4}$				
		$\alpha$	0,148	$2.10^{-4}$				
		$\alpha$	0,148	$2.10^{-4}$				

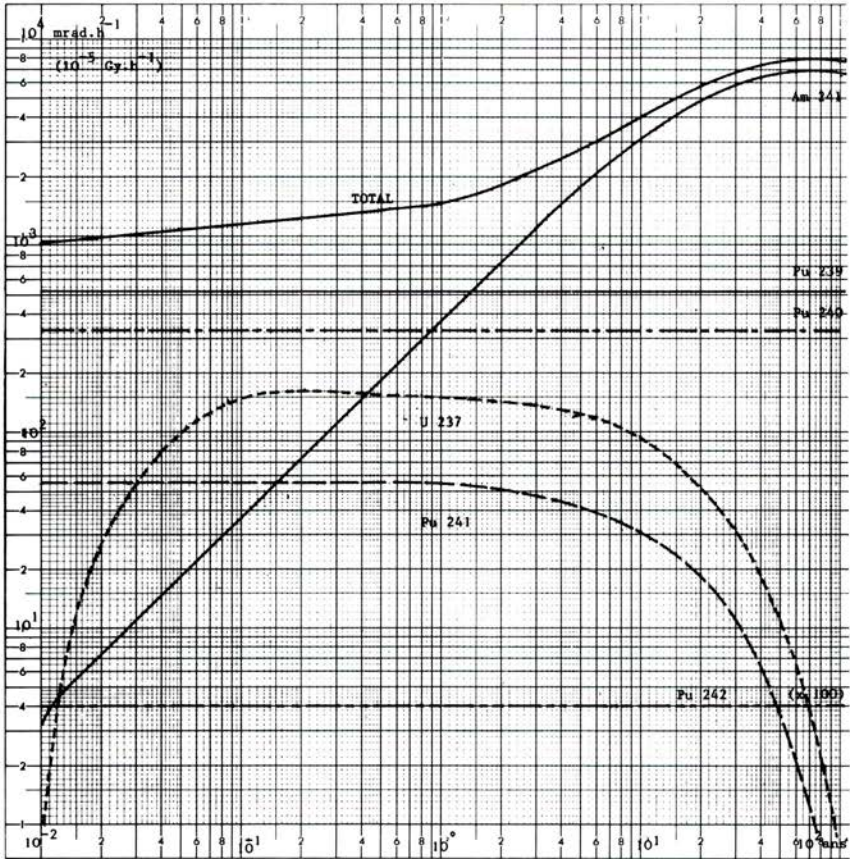
IRRADIATION ET MANIPULATIONS DU "PLUTONIUM IRRADIÉ"

ANNEXE I (suite)

Isotope	Période radioactive	Rayonnements émis			Emissions de neutrons (n.g <sup>-1</sup> .s <sup>-1</sup> )			Filiation
		Type	Ener.MeV	%	Fissions Spontan.	Réactions (α, n)		
						PuO <sub>2</sub>	PuF <sub>4</sub>	
<sup>242</sup> Pu	3,8.10 <sup>5</sup> ans	α α X	4,86 4,9 0,017	24 76 4,1	2300	2,7	450	<sup>238</sup> U
<sup>241</sup> Am	433 ans	α  γX	5,48 5,43 5,38 0,017 0,030 0,059 0,100 0,125 ~ 0,350	85 13 2 42 2,6 36 4,3.10 <sup>-2</sup> 5.10 <sup>-3</sup> 1,26.10 <sup>-3</sup>	0,5	3,1.10 <sup>3</sup>	9,5.10 <sup>5</sup>	<sup>237</sup> Np
<sup>237</sup> U	6,75 jours	β <sup>-</sup> γX	0,238 0,252 0,014 0,030 0,050 0,064 0,100 0,200 0,115 0,370 0,330	56 42 62,9 2,4 36 1,3 45 25 3,7 0,15 1,4				<sup>237</sup> Np
<sup>236</sup> Pu	2,85 ans	α  X	5,614 5,72 5,767 0,014	0,18 30,9 68,9 11,3	3,4.10 <sup>4</sup>	4,5.10 <sup>5</sup>	1,1.10 <sup>8</sup>	<sup>232</sup> U
<sup>232</sup> U	72 ans	α  Xγ	5,14 5,26 5,32 0,013 0,058 0,129 0,270	0,2 31,2 68,6 12,6 0,2 8,2.10 <sup>2</sup> 4.10 <sup>-3</sup>	2,2	1,68.10 <sup>5</sup>	4,4.10 <sup>6</sup>	<sup>228</sup> Th
<sup>228</sup> Th En équilibre avec ses descendants	1,91 an	α  β <sup>-</sup>  γ	5,34 5,44 5,69 6,1 6,28 6,78 8,78 0,34 0,58 1,8 2,25 autres 0,070 0,095 0,220 0,600 2,6 0,300 0,475 0,800 1,6	27 78 95 36 100 100 64 84 16 17 64 19 30 10,6 48 31 36 6,4 8,5 14 2	—	6.10 <sup>6</sup>	1,5.10 <sup>9</sup>	<sup>224</sup> Ra ↓ <sup>220</sup> Rn ↓ <sup>216</sup> Po ↓ <sup>212</sup> Pb ↓ <sup>212</sup> Bi ↓ <sup>212</sup> Po <sup>208</sup> Tl ↓ <sup>208</sup> Pb



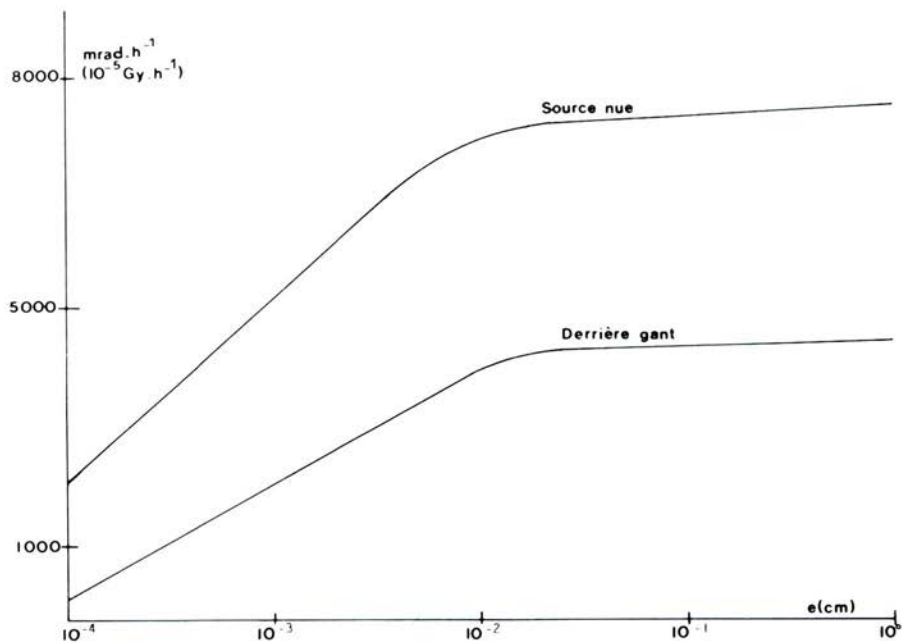
ANNEXE II



Courbe 1. — Contribution de chaque isotope à la dose en fonction de l'âge du Pu (contact gants) (Pu 12 % cylindre).



## ANNEXE II (suite)



Courbe 2. — Débits de dose  $\gamma$  en fonction de l'épaisseur (plaque cylindrique  $\varnothing = 16$  cm - Pu 12 % - Age : 10 ans).