

COMMISSARIAT A L'ÉNERGIE ATOMIQUE

**LES DANGERS DE L'URANIUM IRRADIÉ
DANS LES REACTEURS NUCLEAIRES**

H. JAMMET et H. JOFFRE

Rapport C.E.A. n° 392

1955

Centre d'Études nucléaires de Saclay

Service de Documentation

Boîte postale n° 2 - Clif-sur-Yvette (S. et O.)

- Rapport C.E.A. n° 392 -

Service de Protection contre les Radiations

LES DANGERS DE L'URANIUM IRRADIE
DANS LES REACTEURS NUCLEAIRES

par

H. JAMMET et H. JOFFRE

Communication du C.E.A. à la Conférence de Genève

- Août 1955 -

N. 6

LES DANGERS DE L'URANIUM IRRADIE
DANS LES REACTEURS NUCLEAIRES

Par H. JAMMET (1) et H. JOFFRE (2)

Le danger des cartouches d'uranium suractivé par utilisation dans les réacteurs nucléaires est triple :

- Irradiation à distance, lors des manipulations des cartouches.
- Contamination de l'air au moment de leur dégainage.
- Contamination de l'air par incendie d'uranium dans un réacteur en fonctionnement.

Les deux premiers dangers sont habituels et peuvent être traités grâce aux règles de sécurité en usage dans l'industrie atomique.

Le troisième revêt un caractère accidentel et réclame l'emploi de règles spéciales et exceptionnelles, débordant le cadre industriel, pour atteindre celui des populations environnantes.

I - DANGER D'IRRADIATION γ

A l'examen des spectres de désintégration des produits de fission (3), 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	..Ba ¹⁴⁰ , Nd ¹⁴⁷ , Ru ¹⁰³ ...
II	" " " " 0,75 "	..Zr ⁹⁵ , Nb ⁹⁵ , Sr ⁹¹ , I ¹³² , I ¹³³ ...
III	" " " " 1,5 "	..La ¹⁴⁰ , I ¹³⁵ , I ¹³² ...
IV	" " " " 2,5 "	..La ¹⁴⁰ , I ¹³⁵ ...

Connaissant, en outre, les rendements de fission (4) et les périodes radioactives des produits de fission (3), on peut déterminer pour chacune de ces catégories, l'intensité d'ionisation produite et sa décroissance avec le temps.

Les courbes de la figure 1 représentent les intensités d'ionisation et leur décroissance pour chacune des catégories d'énergies de photons des produits de fission.

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.

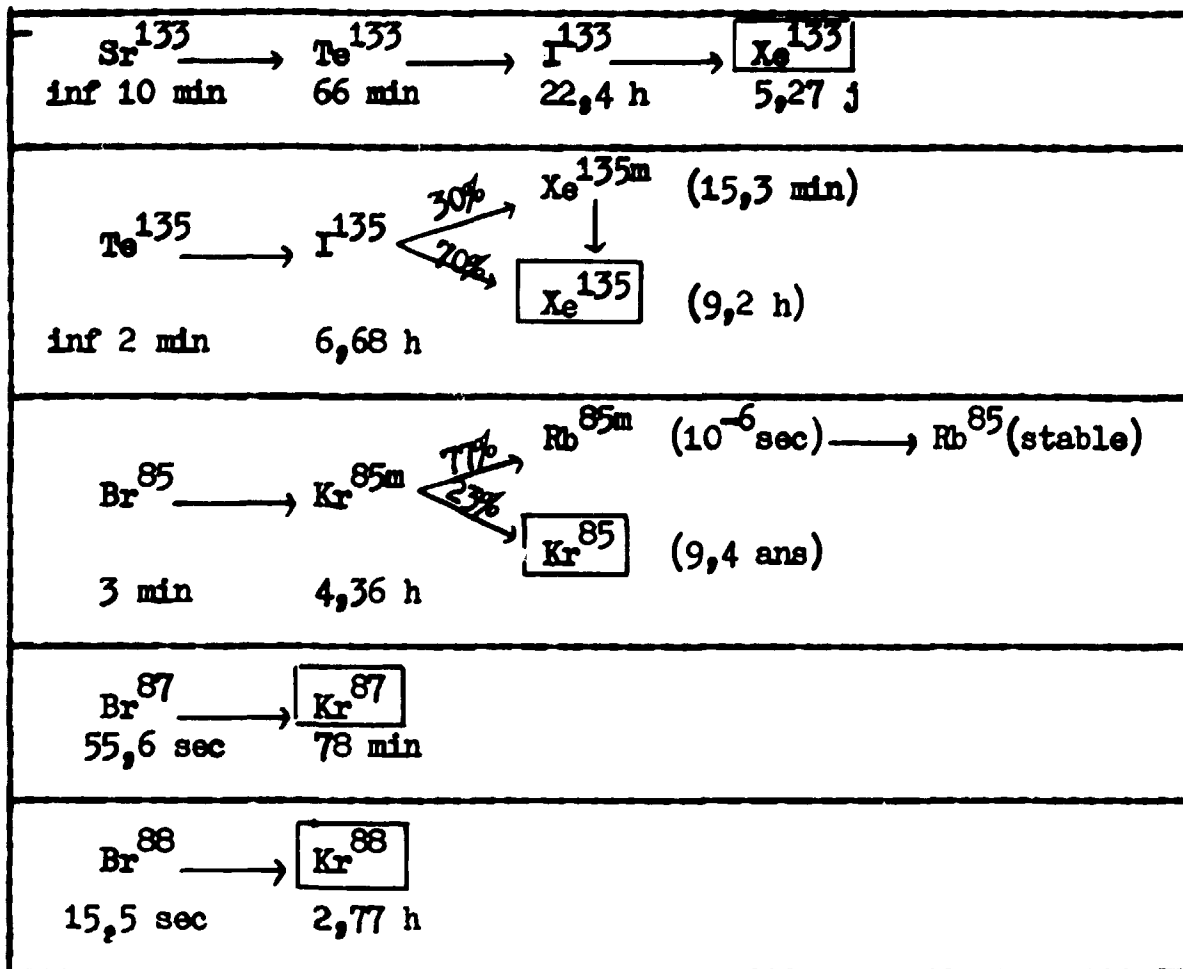
Par exemple, pour une durée de désactivation de 1 jour, les photons de la catégorie III seront seuls à considérer pour la détermination de l'épaisseur de protection.

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

II - DANGER DE CONTAMINATION DE L'AIR LORS DU DEGAINAGE DES CARTOUCHES

D'URANIUM

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



Les périodes radioactives de ces radioéléments sont très courtes. Les périodes des gaz rares, en fin de chaînes, sont les plus longues.

Les gaz de fission étant des gaz rares, le calcul de la concentration maxima permise 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.

Dans ces conditions, la concentration limite 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 de pouvoir d'arrêt dans les tissus et l'air pour les particules β et les électrons secondaires produits par les rayonnements X et γ).

Le rad, correspond à une énergie absorbée par g d'air de 100 ergs soit : $6,3 \cdot 10^7$ Mev.

$\frac{0,3}{1,13}$ rad/sem correspond donc à une énergie absorbée par m^3 d'air et par 1,13 sec 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 limite dans l'air d'un gaz radioactif émettant, par désintégration, une énergie moyenne E_{Mev} sera :

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

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

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 %	4 C	5 mC	6 mC/m ³	7 10 ⁴ m ³
Xe 133	5,3 j	6,6	562	242	5.10 ⁻³	4,8
Xe 135	9,2 h	5,9	317	136	2.10 ⁻³	6,8
Kr 85m	4,36 h	1,65	140	60	3.10 ⁻³	2,0
Kr 85	9,4 ans	0,38	33	13	4.10 ⁻³	0,3
Kr 87	1,3 h	3,5	296	127	6.10 ⁻⁴	21,0
Kr 88	2,8 h	5	425	181	3.10 ⁻³	6,0
TOTAL						41

- 1 - Eléments
- 2 - Périodes
- 3 - Rendements de fission
- 4 - Activité totale des gaz de fission dans la cartouche
- 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 μ d'uranium (détermination expérimentale effectuée à la Pile de Saclay). (Diamètre de la cartouche 26 mm).

- 6 - Concentrations maxima permises pour des durées d'exposition de 24 h/ 24
- 7 - Volume d'air susceptible d'être contaminé à la concentration maxima permise 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 $10^{14} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ (30 W/g), une telle cartouche peut contaminer, par ses gaz de fission, un volume de : 107 m^3 .

III - DANGER DE CONTAMINATION DE L'AIR PAR INCENDIE D'URANIUM DANS UN REACTEUR EN FONCTIONNEMENT.

Pour la population, la concentration maxima permise 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 maxima permise pour la population s'exprime par la relation (5) :

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

où X : Activité maxima permise dans l'air en $\mu\text{C/cc}$ (ou C/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 (6)

f_a : Fraction, de l'activité totale inhalée, retenue dans l'organe critique.

$\sum E(\text{RBE})N$: où

- E : énergie moyenne émise par désintégration sous forme de radiation $\alpha, \beta, \gamma, \bar{e}, n_{th}, n_r, p \dots$ en Mev.

- RBE : facteur d'efficacité biologique (relative biological effectiveness).

- 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 maxima, l'irradiation ne doit pas dépasser 0,03 rem/sem d'où la nécessité de ce facteur N.

- : Durée de présence dans l'atmosphère contaminée, en jours.

1) Première évaluation du danger

La formule (I) permet de déterminer les concentrations maxima permises pour des expositions devant durer toute la vie.

- On a, dans ce cas, pour tous les produits de fission importants et l'uranium :

$$1 - e^{-0,693 \theta / T_E} = 1$$

On peut écrire :

$$X_{inf} = 0,294 \cdot 10^{-11} \frac{m}{T_E \cdot f_a \cdot E(RBE)N}$$

- Pour le plutonium :

$$1 - e^{-0,693 \theta / T_E} = 0,34 \text{ (pour } \theta = 70 \text{ ans)}$$

On prend pour le plutonium :

$$X_{70 \text{ ans}} = X_{inf} / 0,34$$

Une première évaluation du danger de la contamination de l'air par l'uranium chaud peut être faite, si l'on admet que la contamination de l'air ne doit pas dépasser les valeurs des concentrations maxima permises

X_{inf} pour les produits de fission et l'Uranium

$X_{70 \text{ ans}}$ pour le plutonium

De la connaissance des concentrations maxima permises, des rendements de fission (4) et des périodes radioactives (3), on détermine l'importance du danger d'inhalation de l'air contaminé par l'Uranium, le Plutonium et les produits de fission.

Les organes critiques pour une telle contamination sont essentiellement les os et la glande thyroïde.

La figure 2 représente l'importance du danger et sa décroissance pour les os.

L'unité, en ordonnée, est la concentration maxima permise pour la population dans le cas d'une exposition prolongée.

Le calcul est effectué dans le cas d'une contamination d'1 g d'Uranium par m^3 d'air; l'uranium ayant été irradié 1 an à 30 W/g.

Le plutonium et l'ensemble des produits de fission représentent des dangers du même ordre.

1 g d'Uranium chaud est susceptible de contaminer à la concentration maxima permise un volume de $10^{10} m^3$ d'air

La figure 3 représente l'importance du danger dans le cas de la glande thyroïde.

Le danger est ici quatre fois moindre que pour les os et sa décroissance est beaucoup plus rapide.

2) Deuxième évaluation du danger

Dans le cas où l'exposition est limitée à $\theta = 1$ jour, l'irradiation de l'organe critique ne dépassera pas 0,03 rem/sem, soit : $5 \cdot 10^{-8}$ rem/sec si la contamination de l'air n'est pas supérieure à :

$$X_1 = \frac{X_{inf}}{1 - e^{-0,693/T_E}} \text{ pour les produits de fission, le plutonium et l'uranium.}$$

(T_E est exprimé en jours dans ces formules)

Les dangers comparés de l'uranium, du plutonium, des produits de fission pour les os et des produits de fission pour la glande thyroïde sont figurés dans le tableau suivant :

	Dangers comparés			
	de U	Pu	PF os	PF glande thyroïde
1 ère évaluation	1 (unité)	15.500	42.000	15.700
2 ème évaluation	0,023	0,73	660	7.100

3) Troisième évaluation du danger

Une troisième façon d'évaluer le danger est de déterminer la dose intégrée subie par l'organe critique pendant une durée θ de présence en atmosphère contaminée suivie d'une durée t de présence en atmosphère non contaminée.

a) Intensité d'irradiation de l'organe critique pendant la présence en atmosphère contaminée.

Si l'atmosphère est contaminée à la concentration : X_{inf} (voir 1 ère évaluation), l'irradiation de l'organe critique est de :

$$5 \cdot 10^{-8} \text{ rem/sec, à saturation.}$$

$$I_{\theta} = 5 \cdot 10^{-8} \cdot (1 - e^{-\lambda_E \theta}) \text{ rem/sec, après une durée de présence } \theta \text{ en atmosphère contaminée.}$$

Si l'atmosphère est contaminée à la concentration :

$$x = x_0 e^{-\lambda_R \theta} \text{ (} x_0 \text{ : contamination à l'instant de l'accident),}$$

l'irradiation de l'organe critique est :

$$I_e = \frac{x}{x_{inf}} \cdot 5 \cdot 10^{-8} \cdot (1 - e^{-\lambda_E e}) \text{ rem/sec}$$

ou $I_e = \frac{x_0}{x_{inf}} \cdot 5 \cdot 10^{-8} \cdot (1 - e^{-\lambda_E e}) \cdot e^{-\lambda_R e} \quad (\text{II})$

b) Dose intégrée subie par l'organe critique pendant la présence en atmosphère contaminée

La dose intégrée subie par l'organe critique est :

$$D_e = \int_0^e I_e \, de, \text{ d'où avec (II)}$$

$$D_e = \frac{x_0}{x_{inf}} \cdot 5 \cdot 10^{-8} \cdot \frac{1}{\lambda_R} (1 - e^{-\lambda_R e}) - \frac{1}{\lambda_E + \lambda_R} (1 - e^{-(\lambda_E + \lambda_R)e})$$

(III)

Cette formule est générale. (λ est exprimé en sec^{-1})

c) Dose intégrée subie par l'organe critique pendant un temps t compté à partir de l'instant où la personne est retirée de l'atmosphère contaminée.

Après la contamination de durée e , l'intensité d'irradiation dans l'organe critique décroît suivant :

$$I_t = I_e e^{-\lambda_E t}$$

et la dose subie est :

$$D_t = I_e \cdot \left(\frac{1 - e^{-\lambda_E t}}{\lambda_E} \right)$$

a) Pour T_R inférieur à 10 jours

$$D_t = \frac{x_0}{x_{inf}} \cdot 5 \cdot 10^{-8} (1 - e^{-\lambda e}) \cdot e^{-\lambda e} \cdot \left(\frac{1 - e^{-\lambda t}}{\lambda} \right)$$

ou pour $e = 1$ jour

$$D_t = \frac{x_0}{x_{inf}} \cdot 6,2 \cdot 10^{-3} \cdot T \cdot (1 - e^{-0,7/T}) \cdot e^{-0,7/T} \cdot (1 - e^{-0,7 \frac{t}{T}})$$

(IV)

ou T est exprimé en jours et D_t en rem.

β) Pour T_R supérieur à 10 jours

$$D_t = \frac{x_0}{x_{inf}} \cdot 5 \cdot 10^{-8} \cdot e \cdot (1 - e^{-\lambda_E t})$$

ou pour $e = 1$ jour

$$D_t = \frac{x_0}{X_{inf}} \cdot 4,3 \cdot 10^{-3} \cdot \left(1 - e^{-0,7 \frac{t}{T_E}}\right) \quad \text{V}$$

REMARQUE : on peut écrire

$$D_t = D_{inf} \left(1 - e^{-0,7 \frac{t}{T_E}}\right) \quad \text{VI}$$

Dans le tableau joint en annexe, le calcul des doses intégrées est effectué pour l'uranium, le plutonium et les produits de fission donnant les doses intégrées les plus importantes.

La contamination, par m^3 d'air, est supposée produite par 1 g d'uranium irradié à 30 W/g pendant 1 an.

APPLICATION

Admettons qu'après un accident survenant à un réacteur en fonctionnement depuis 1 an à une puissance de 30 W/g, l'air du bâtiment se trouve contaminé à raison de 1 g d'uranium par m^3 d'air.

1) La population est évacuée 24 heures après l'accident.

Une irradiation peut être considérée comme massive dans le cas où la dose est reçue en une durée de l'ordre de 50 jours.

Les calculs précédents permettent d'évaluer à $1,2 \cdot 10^7$ rem la dose qui serait reçue en 50 jours par l'organe critique (os), dans le cas où la personne resterait 24 heures dans le bâtiment du réacteur accidenté.

Déterminons quel est le volume d'air contaminé que l'on peut, en un jour, laisser sortir du bâtiment pour que la dose reçue par la population sous le vent soufflant de la direction du réacteur ne dépasse pas, 50 jours après l'évacuation, la valeur de 50 rem dans l'organe critique.

La dilution nécessaire est $\frac{1,2 \cdot 10^7}{50} = 2,4 \cdot 10^5$

Si l'on admet que l'air contaminé s'échappant du bâtiment est réparti de façon homogène dans une section de 1000 m^2 et emporté par un vent de vitesse moyenne 1 m/sec, le volume d'air que l'on peut laisser échapper est :

$$\frac{0,864 \cdot 10^5 \cdot 10^3}{2,4 \cdot 10^5} \quad \text{soit } \underline{\underline{360 \text{ m}^3}}$$

2) La population n'est pas évacuée.

Les calculs précédents permettent d'évaluer à $2,3 \cdot 10^{11}$ rem, l'irradiation de l'organe critique dans le cas théorique d'une présence de 70 ans dans le bâtiment contaminé.

Pour que la dose moyenne de 300 mr/sem (1100 rem en 70 ans) ne soit pas dépassée, le facteur de dilution nécessaire est

$$\frac{2,3 \cdot 10^{11}}{1,1 \cdot 10^3} = 2 \cdot 10^8$$

Le volume d'air que l'on peut, par jour, laisser échapper du bâtiment devient :

$$\frac{0,864 \cdot 10^5 \cdot 10^3}{2 \cdot 10^8} = \underline{\underline{0,43 \text{ m}^3}}$$

CONCLUSION

L'étude des dangers habituels que présentent la manipulation et le dégainage des cartouches d'uranium activé dans les réacteur nucléaires a permis d'en préciser la nature et l'ampleur. Les courbes et les tableaux présentés permettent de résoudre les problèmes de protection qui se posent en fonction de l'activation de l'uranium dans le réacteur et la désactivation postérieure à la sortie des cartouches.

L'étude des dangers accidentels, qui peuvent survenir en cas d'incendie d'uranium dans un réacteur en fonctionnement, a été poursuivie sur des bases différentes des règles utilisées en protection radiologique industrielle banale. A partir des concentrations maximales tolérables pour les populations environnantes, on a pu établir les intensités et les doses d'irradiation en fonction du taux initial de contamination atmosphérique et du temps passé en milieu contaminé. Les formules présentées permettent de résoudre les problèmes de protection qui devraient être réglés rapidement en cas d'incendie de réacteur : volume d'air à laisser sortir journallement du bâtiment, temps et durée d'évacuation des lieux, etc...

Les résultats relatifs à ces études font apparaître des différences notables dans la toxicité relative des produits de fission, de l'uranium et du plutonium, en cas d'accident, par rapport à celle établie par les recommandations internationales pour des travaux normaux et de longue durée. Par exemple, en cas d'incendie les couples Ba-La 140 et Ce-Pr 144 et l'Y 91 deviennent les corps les plus toxiques par leurs effets immédiats.

- (1) H.JAMMET , chef du Service de Protection contre les Radiations
au C.E.A.
- (2) H.JOFFRE, Service de Protection contre les Radiations au C.E.A.
- (3) J.M. HOLLANDER - Table of isotopes
Review of Modern Physics - 25-469
- (4) CORYELL and SUGARMAN - Radiochemical Studies
The fission products - p.2004.
- (5) International Commission on Radiological Protection Copenhagen 1953.
- (6) $\lambda_E = \lambda_R + \lambda_B$ ou $\frac{1}{T_E} = \frac{1}{T_R} + \frac{1}{T_B}$

T_R : période radioactive

T_B : période biologique

Eléments	T_E jour	D_0		D_t pour $e = 1$ jour					
		$e = 1$ jour 10^3 rem	$e = 70$ ans 10^6 rem	$t = \text{inf}$ 10^3 rem	$t = 10$ j 10^3 rem	$t = 50$ j 10^3 rem	$t = 1$ an 10^3 rem	$t = 10$ ans 10^3 rem	$t = 70$ ans 10^3 rem
Sr^{89}	52	16,5	95	2.450	300	1.175	2.450	d°	d°
Sr^{90} + Y^{90}	$2,7 \cdot 10^3$	1	64.000	7.750	20	100	700	4.650	7.750
Y^{91}	51	48	310	7.100	920	3.500	7.100	d°	d°
Ba^{140} + La^{140}	12	94	30	3.200	1.375	3.100	3.200	d°	d°
Ce^{144} + Pr^{144}	180	32	4.100	16.750	750	2.850	12.600	16.750	d°
Pu^{239}	$4,3 \cdot 10^4$	0,35	162.000	43.000	7	37	260	2.600	14.500
...	...	---	---	...	---	---	---	---	---
TOTAL (OS)		283	230.000		3.900	12.000	28.300	38.800	53.700
I^{131}	7,7	225	32	4.600	2.700	4.500	4.600	d°	d°
I^{133}	0,92	1.300	4,8	2.350	2.350	d°	d°	d°	d°
...	...	---	---	...	---	---	---	---	---
TOTAL (GLANDE THYROÏDE)		1.840	37		5.100	6.900	7.000	7.000	7.000
U (REINS)	30	0,011	240	1,0	0,3	0,7	1,0	d°	d°

FIGURE 1

Décroissance d'activité γ de l'uranium.

1 kg d'uranium irradié à saturation à 1w/g
($3,14 \cdot 10^{12}$ n.ét./cm²sec dans U naturel)

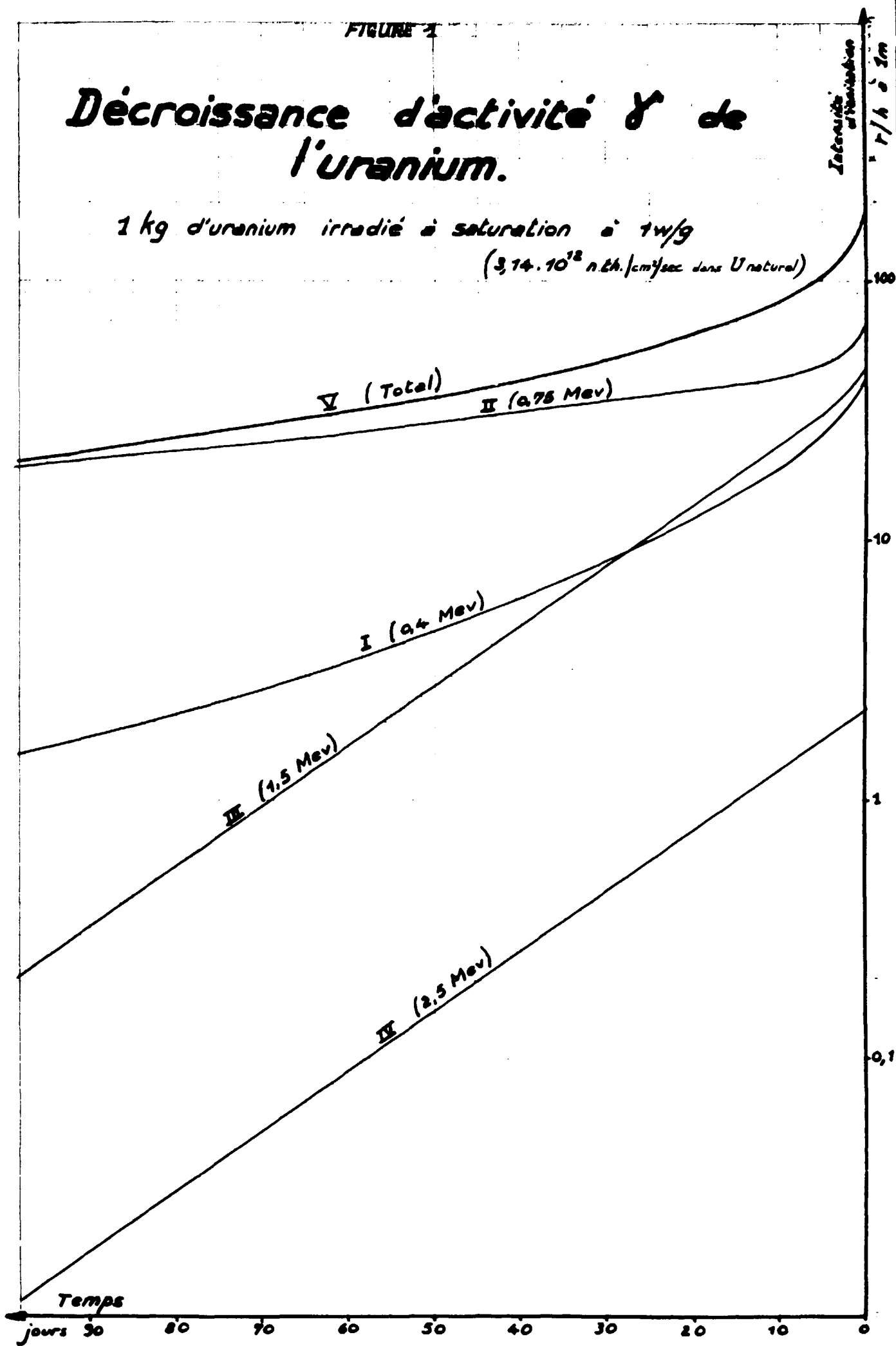


FIGURE 2

Os (Produits de fission & Plutonium)

Décroissance du danger d'inhalation d'air contaminé par 1g. d'uranium (irradié 1 an à 30w/g) par m³ d'air.

Unité : La concentration maximale permise pour les grandes populations.

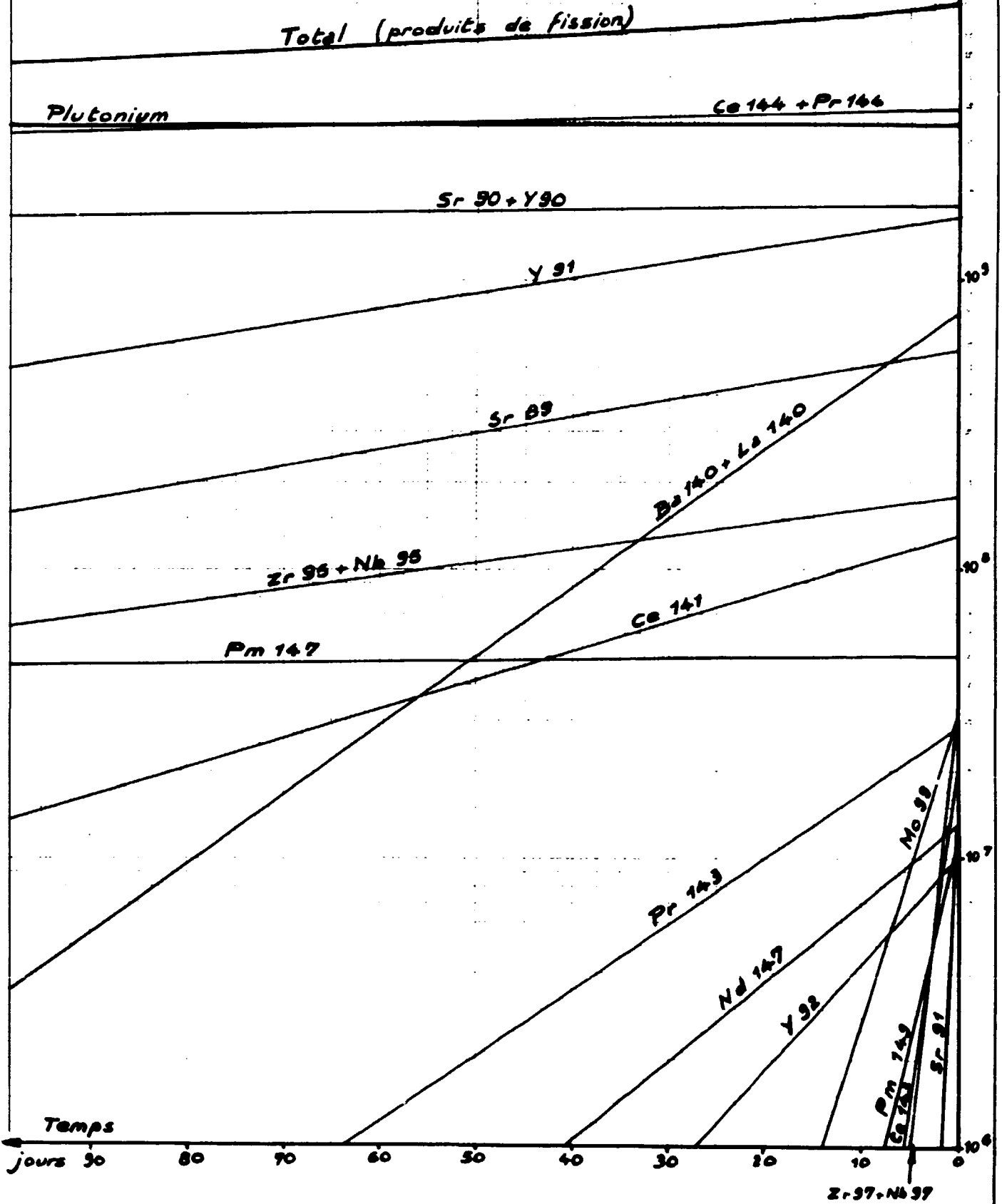
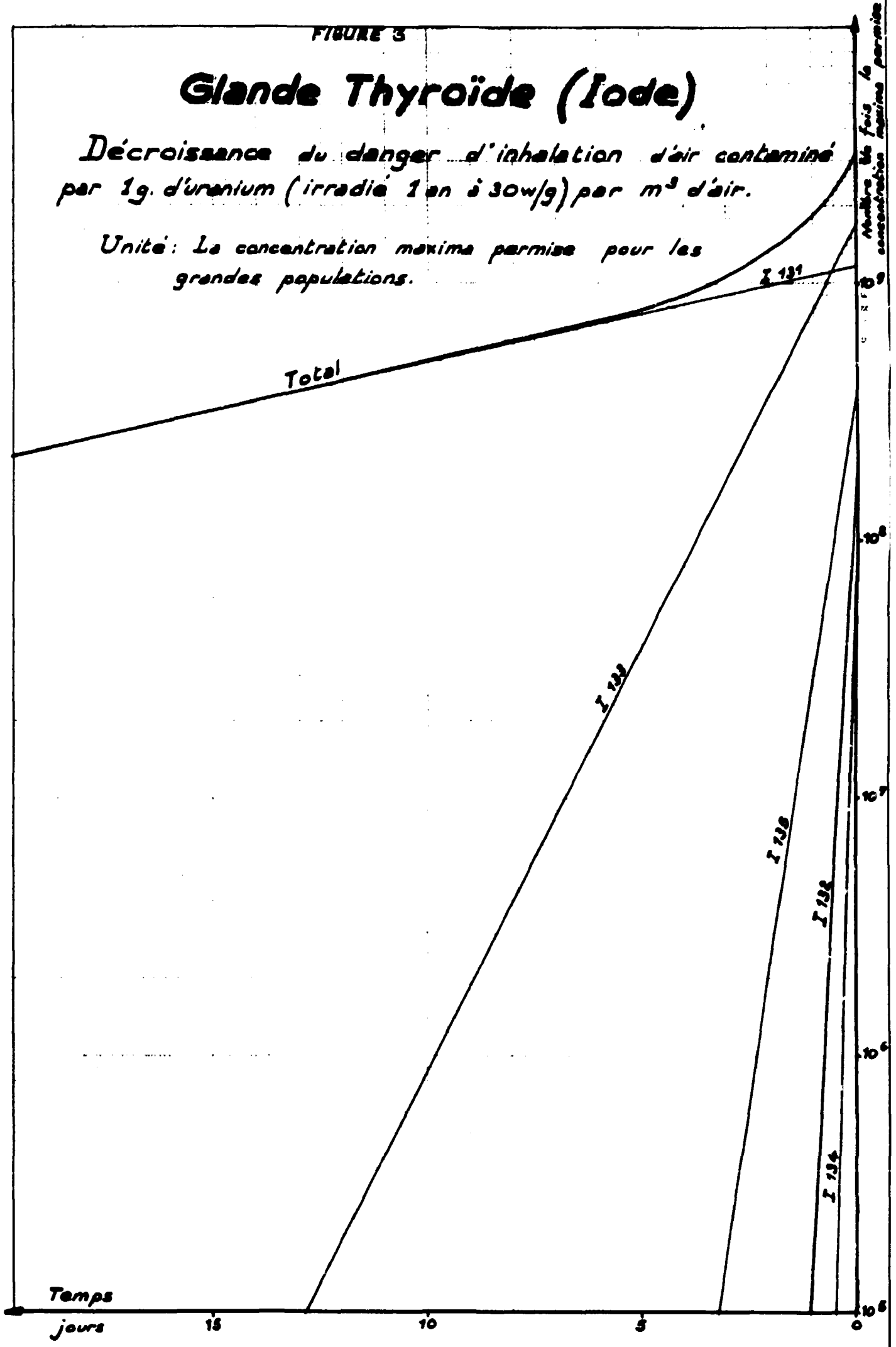


FIGURE 3

Glande Thyroïde (Iode)

Décroissance du danger d'inhalation d'air contaminé par 1g. d'uranium (irradié 1 an à 30w/g) par m³ d'air.

Unité: La concentration maximale permise pour les grandes populations.



FIN