

# LA CONTAMINATION DU CIRCUIT PRIMAIRE DES RÉACTEURS DE CHINON

J. BARBIER, B. HOUPIN et G. CORDIER

G.R.P.T.O.-S.P.T.-E.D.F., B.P. n° 23, 37—Avoine, France

M. DELPLA

S.G.R.-E.D.F., 73, Bld Haussmann—75-Paris 8°

**Résumé**—Les auteurs passent en revue les principaux éléments radio-actifs rencontrés dans le fluide caloporteur (gaz carbonique) des réacteurs de la centrale nucléaire de Chinon.

Parmi les produits d'activation, certains, imprévus, comme le mercure 203, ont un caractère permanent; d'autres ne se manifestent que transitoirement.

Indépendamment des ruptures de gaine, il y a toujours des produits de fission dans le gaz carbonique. Les auteurs indiquent comment ils mesurent indirectement cette contamination du circuit par le césium 138.

## 1. INTRODUCTION

Dès l'étude des projets, il convient de connaître quelle sera la contamination radioactive du circuit primaire de refroidissement des réacteurs nucléaires, afin de prévoir: d'une part les écrans nécessaires à l'atténuation des rayonnements pénétrants; d'autre part, les moyens à mettre en œuvre pour éviter une concentration excessive de radio-éléments dans l'air susceptible d'être inhalé. Des considérations théoriques, à partir de données parfois incertaines, permettent de prévoir cette contamination: nature et activité volumique des principaux radio-éléments.

Avant d'exposer et de discuter les résultats observés sur nos réacteurs de Chinon, nous donnerons quelques indications sur les installations.

## 2. LES INSTALLATIONS

Nous allons décrire très sommairement la centrale nucléaire de Chinon et les moyens de mesure de la contamination du fluide caloporteur.

### 2.1. La centrale nucléaire de Chinon

La centrale nucléaire de Chinon comprend trois tranches désignées par le sigle E.D.F. suivi d'un numéro d'ordre allant de 1 à 3. Chaque tranche comporte un réacteur nuc-

léaire et un groupe turbo-alternateur (E.D.F. 1) ou deux (E.D.F. 2 et E.D.F. 3). On emploie l'uranium naturel comme combustible, le graphite comme modérateur, l'anhydride carbonique ( $\text{CO}_2$ ) sous pression (environ 25 bars) comme fluide caloporteur. Les cartouches de combustible, gainé en alliage de magnésium et de zirconium, sont superposées dans des canaux verticaux ménagés dans la masse du graphite. Le nombre de cartouches passe de 17000 à E.D.F. 1 à plus de 40000 à E.D.F. 3, pour une puissance électrique nette allant de 60 à 480 MW. Ce type de réacteur a été décrit en détail dans de nombreuses publications.<sup>(1, 2, 3)</sup> Le lecteur peut trouver une vue générale de la centrale nucléaire de Chinon dans une communication présentée à ce même congrès.<sup>(4)</sup>

### 2.2. Mesure de la contamination du $\text{CO}_2$

Plusieurs dispositifs, étudiés et mis au point par le Commissariat à l'énergie atomique (C.E.A.), permettent de suivre l'évolution de la contamination du  $\text{CO}_2$ ; il est en outre possible, dans chacune des tranches, de prélever directement des échantillons dans la veine gazeuse.

Nous nous bornerons à rappeler brièvement le principe de fonctionnement du dispositif de détection de rupture de gaine (D.R.G.) et

être obtenue que si les agents, bien informés des risques, connaissent parfaitement les consignes; elle impose aux cadres un effort constant de formation et d'information du personnel. Le comité d'hygiène et de sécurité de la centrale, dont le médecin du travail, membre de droit, est un membre actif, associé à cet effort, participe à la promotion et au maintien de l'esprit de sécurité. De nombreux moyens sont mis en œuvre: affiches, films, conférences, visites de chantiers.

Si des résultats encourageants ont pu être obtenus avec les agents de la centrale, un problème se pose actuellement avec les agents d'entreprise qui, nombreux, participent à la mise au point du matériel pendant les périodes de démarrage et à l'entretien pendant les périodes de révision: ce personnel, mouvant, ignore le plus souvent les principes de radioprotection les plus élémentaires; son emploi exige, de la part des responsables de la centrale, un effort de formation considérable, d'autant que la plupart des chefs d'entreprise, sans doute effrayés par leur complexité, préfèrent tout ignorer des problèmes de radioprotection.

La présence, sur le site, de l'A.M.I., simplifie l'exploitation de la centrale nucléaire de Chinon, du fait que cette installation indépendante (elle relève aussi du S.P.T.) reçoit les effluents solides (y compris les effets spéciaux après usage) et les effluents liquides, en vue de stockage et, s'il y a lieu, de traitement et de rejet. Si ces opérations devaient être effectuées à la centrale, il faudrait prévoir le personnel et le matériel correspondants. Cela ne créerait sans doute pas de difficultés particulières: les déchets solides vraiment contaminés représentent peu de chose et les effluents liquides contiennent une activité négligeable (57 millicuries rejetés en Loire en 1965).

Par contre, avec ses trois tranches nettement différentes les unes des autres, la centrale de Chinon représente trois étapes importantes dans notre acheminement vers la réalisation d'une centrale nucléaire industrielle. Le franchissement de chaque étape comporte des extrapolations qui, souvent, demandent des corrections; ainsi, nous pensons que l'exploitation des tranches de Chinon deviendra plus facile, et aussi

que les tranches à venir poseront moins de problèmes de radioprotection que n'en ont posé celles de Chinon qui, expérimentales, sont encore aujourd'hui en période de mise au point.

## 6. CONCLUSION

Où sont les limites de la radioprotection dans une centrale nucléaire? Il est classique de dissocier sûreté nucléaire et radioprotection, radioprotection et sécurité. Les problèmes de sûreté nucléaire et de radioprotection doivent être envisagés dès l'étude des projets, aussi le chef de centrale est-il associé dès le début à l'équipe chargée de cette étude dont il suit les progrès, avant de suivre la construction.

Nous n'avons plus à délimiter de frontières: le chef de centrale est responsable de l'ensemble; à ses responsabilités, il associe l'ensemble de son personnel.

En confiant aux travailleurs le soin d'assurer leur propre protection, nous avons misé sur l'avenir: dans chaque centrale nucléaire, du haut en bas de l'échelle, la responsabilité sera assurée par des personnes qui auront été appelées à s'imposer les contraintes dues à la radioprotection à tous les échelons franchis; par exemple, tout chef-adjoint de centrale aura été chef de service et, dans la mesure du possible, représentant local du S.G.R., poste dans lequel la radioprotection et la sûreté nucléaire auront été ses seules préoccupations.

Ce parti pris nous a paru souhaitable: le noyau fissile étant appelé à devenir la principale source d'énergie, il convient que les travailleurs des centrales nucléaires, comme, d'ailleurs, ceux des entreprises qui travaillent à leur mise au point, s'accoutument et s'adaptent à la prévention des risques d'origine nucléaire comme ils l'ont fait pour les autres types de risques, non moins dangereux.

## RÉFÉRENCES

1. J. P. ROUX et C. BIENVENU. *C.R. 2ème conf. utilisat. pacif. én. at.*, Genève, 1958, Vol. 5, p. 298 (1958).
2. C. BIENVENU, P. PASSERIEUX et P. BACHER. *C.R. 3ème conf. utilisat. pacif. én. at.*, Genève, 1964, Vol. 5, p. 67 (1965).
3. J. P. ROUX et C. BIENVENU. *J. Brit. Nuclear En. Sy.* 1, 235 (1962).

ment au mercure 197, de 65 heures de période; ces deux isotopes n'émettent que des photons, et ces photons sont mous ou très mous. Le mercure 202, de proportion isotopique égale à 30% donne, avec une section efficace de 3,8 barns, du mercure 203, de 45 jours de période; il est intéressant de noter que ce nucléide n'émet que des rayons  $\beta$  très mous et une raie  $\gamma$  à 279 keV.

Il nous est arrivé d'être surpris par l'arrivée d'une contamination importante. Ainsi, peu de temps après la mise en exploitation industrielle du réacteur E.D.F. 1, le circuit primaire de refroidissement a été littéralement envahi par du sodium 24 (période 15h, photons de 1,38 et 2,75 MeV). La charge du dessiccateur, dans le circuit dérivé destiné à assurer l'épuration continue du  $\text{CO}_2$ , venait d'être changée; le fournisseur confirma l'emploi d'un nouveau produit à base de sodium.

L'origine du radionucléide dont on croit avoir identifié le spectre n'est pas toujours commode à déterminer; il en est ainsi pour l'antimoine 124 et le brome 82, trouvés dans plusieurs échantillons prélevés à E.D.F. 1 et E.D.F. 2.

L'analyse spectrométrique  $\gamma$  donne parfois des pics difficiles à identifier. Par exemple, on trouve, sur certains échantillons, un pic voisin de 560 keV, dont la présence paraît liée à l'introduction accidentelle d'huile dans le circuit de refroidissement; il pourrait bien s'agir d'arsenic 76 ou d'antimoine 122.

Nous nous bornerons à rappeler, pour mémoire, que les réacteurs de cette filière produisent aussi du tritium, trouvé dans l'eau récupérée par dessiccation du  $\text{CO}_2$ . Les concentrations, faibles, ne posent pas de problèmes de radioprotection. (7)

### 3.2. Les produits de fission

Indépendamment de toute rupture de gaine (événement exceptionnel et promptement détecté par le dispositif de D.R.G.), même lors du premier chargement, le gaz carbonique charrie des produits de fission formés à partir de l'uranium fixé sur les gaines. "La contamination extérieure des gaines peut se mesurer en centimètres carrés d'uranium nu par un détecteur de produits de fission étalonné en surface émissive... Un centimètre carré d'uranium métallique nu émet autant de produits de fission que 6, 4 mg d'uranium déposés en couche infiniment mince... La valeur généralement admise pour cette contamination des gaines est de:  $10^{-8}$  g/cm<sup>2</sup>..." (5) De ces données et des caractéristiques du chargement, (5, 8) on déduit la surface d'uranium métallique nu équivalente à la contamination des gaines dans chacun des réacteurs. L'ensemble des valeurs numériques est rapporté dans le tableau 1.

Il va sans dire que toutes les contaminations mesurées varient d'un réacteur à un autre et, pour un même réacteur, dans le temps.

## 4. RÉSULTATS ET DISCUSSION

Il importe de connaître l'origine de la contamination du fluide caloporteur, afin de parer à cette contamination à partir du moment où, devenue gênante, elle risque d'arriver à être dangereuse, créant dans les locaux un débit d'exposition excessif par émission  $\gamma$ , ou une contamination notable de l'atmosphère. Par ailleurs, il est possible de mettre à profit certains aspects de cette contamination.

### 4.1. Résultats relatifs à l'irradiation

Le sodium 24 donnait, à plusieurs mètres des filtres du dispositif de D.R.G., un débit

Tableau 1. Contamination des gaines en uranium (Surface équivalente d'uranium métallique)

Réacteur	E.D.F. 1	E.D.F. 2	E.D.F. 3
Surface gaines/canal (m <sup>2</sup> )	5,6	4,8	7,8
Nombre canaux	1150	2500	3264
Surface totale gaines (m <sup>2</sup> )	6450	12,000	25,400
Contamination moyenne (g d'U)	0,64	1,20	2,54
Surface équivalente (cm <sup>2</sup> d'U nu)	100	200	400

du dispositif de contrôle continu de l'activité du  $\text{CO}_2$  (D.C.C.A.- $\text{CO}_2$ ).

Le dispositif de D.R.G. <sup>(6)</sup> met en mémoire l'activité due aux descendants des gaz de fission (rubidioms et césiums) mesurée sur le  $\text{CO}_2$  prélevé à la sortie de chaque canal (en moyenne toutes les vingt-quatre minutes) les activités trouvées sont comparées à celles mises en mémoire en l'absence de rupture de gaine, compte tenu, s'il y a lieu, de la variation de la puissance du réacteur et du débit de  $\text{CO}_2$ . Si l'évolution dépasse un seuil d'alarme, un calculateur numérique donne l'ordre de "passage sur suiveur": l'évolution de l'activité du canal en rupture de gaine est alors suivie de façon continue. Cette évolution est graduée en "surface équivalente d'uranium nu"; par exemple, la D.R.G. de E.D.F. 2 donnerait 1200 impulsions par seconde à la sortie de l'électronique si une surface nue de un centimètre carré d'uranium naturel métallique était placée au centre d'un canal central de la pile fonctionnant en régime nominal.

La D.C.C.A.- $\text{CO}_2$  comprend essentiellement un filtre à haut rendement vu par un compteur Geiger-Muller (G. M.), et suivi d'une chambre d'ionisation à circulation. <sup>(6)</sup> Il peut ainsi donner une alarme, par le G.-M., en cas de montée brutale de l'activité arrêtée par le filtre, et suivre l'évolution de l'activité  $\beta$  totale due aux gaz mélangés au  $\text{CO}_2$  (on laisse à ceux qui ont une courte période, tel l'azote 16, le temps de disparaître dans un volume temporisateur).

Enfin, des échantillons sont prélevés sur le circuit primaire, soit sur filtre, soit, après filtration, en récipient. Sur ces échantillons, on peut procéder, par des mesures globales d'activité, à des études de décroissance, ou chercher à identifier les principaux nucléides par spectrométrie gamma.

### 3. LES PRINCIPAUX RADIO-ÉLÉMENTS RENCONTRÉS

Tandis que la nature des produits de fission est bien connue, celle des produits d'activation ménage parfois des surprises.

#### 3.1. Les produits d'activation

Les éléments activables se trouvent dans les matériaux de structure et dans le fluide caloporteur. Pour l'économie de neutrons, d'in-

térêt primordial dans cette filière de réacteurs, ces matériaux et ce fluide sont composés d'éléments de très faible section efficace de capture.

Dans le modérateur (graphite), seul le carbone 13 s'active en donnant du carbone 14; toutefois, sa proportion dans le carbone et sa section efficace sont très faibles. L'érosion du métal des gaines des éléments combustibles ne libère que des traces de zirconium 95. En fait, par suite des phénomènes de corrosion et d'érosion, l'acier est un pourvoyeur important: outre du manganèse 56 et du chrome 51, produits en quantités très faibles, on trouve deux isotopes du fer, de nombres de masse 55 et 59; le premier n'émet que des X, par capture électronique, avec une période de 2,9 ans, le second, des  $\gamma$  assez pénétrants (1,1 et 1,3 MeV) avec une période de 45 jours. Les périodes de ces deux isotopes diffèrent grandement; de plus, du fer ayant été irradié à saturation, l'activité du premier est environ cinquante fois plus grande que celle du second. La présence de fer 55 est particulièrement difficile à détecter.

Malgré sa très faible section efficace (20 micro-barns, en moyenne, pour les neutrons rapides) en raison de la masse considérable qui circule au cœur même du réacteur, l'oxygène 16 du  $\text{CO}_2$  produit une activité notable d'azote 16, de très courte période (7 s), mais émetteur de rayons  $\gamma$  très pénétrants (6 à 7 MeV).

Enfin le  $\text{CO}_2$  charrie des impuretés activables, soit du fait d'épuration incomplète, soit par suite d'introduction, par erreur, de substances étrangères.

L'argon 40 contenu dans l'air mélangé au  $\text{CO}_2$  s'active en argon 41 qui, avec une période voisine de 2h, émet un photon de 1,3 MeV. Mentionnons, pour mémoire, la formation de carbone 14 à partir de l'azote 14 et de l'oxygène 17.

Nous avons pris l'habitude de trouver du mercure dans nos réacteurs. Le fait n'est pas surprenant puisque, surtout pendant la période des essais, mais aussi en période d'exploitation, ce liquide est d'un emploi commode pour les mesures de débit du  $\text{CO}_2$ . Le mercure 196, en faible proportion isotopique (0,15%), présente des sections efficaces de capture considérables pour les neutrons thermiques: avec 420 barns, il conduit au mercure 197 métastable, de courte période (24 h), et avec 880 barns, directe-

d'exposition de 2,5 mR/h. Les sources de cette irradiation étaient très localisées.

A l'inverse des poussières et aérosols qui sont recueillis par les filtres, les gaz radio-actifs diffusent dans l'ensemble du circuit et provoquent l'élévation générale du niveau du rayonnement  $\gamma$ . Les écrans de protection, interposés entre les lieux fréquentés par le personnel et le circuit de  $\text{CO}_2$ , s'avèrent par endroits nettement insuffisants lors d'un démarrage après vidange lorsque la purge de l'air du circuit n'a pas été assez poussée: l'argon 41 donne plus de 100 mR/h, à E.D.F.1, sur le palier situé à hauteur des réservoirs de stockage du  $\text{CO}_2$ :

#### 4.2. Contamination de l'atmosphère, valeur des résultats

Comme les gaz, les vapeurs se répandent dans l'ensemble du circuit, diffusent à l'extérieur avec le  $\text{CO}_2$ ; de plus, elles sont plus ou moins adsorbées par les surfaces, et elles les contaminent. On peut connaître la contamination de l'air, soit par des mesures directes, soit à partir de mesures effectuées sur le  $\text{CO}_2$  du circuit. La première méthode est difficile en raison du faible niveau à atteindre; la seconde peut donner des résultats valables si l'on a une idée du taux de séparation des radio-éléments à travers les orifices de sortie. En première approximation, on peut mesurer la concentration d'un élément à l'intérieur du circuit de  $\text{CO}_2$  et en déduire sa concentration dans l'atmosphère en supposant qu'il y a eu simple dilution; cette hypothèse simplificatrice peut conduire à des conclusions tout à fait erronées; elle présente le mérite d'être simple et offre l'avantage, appréciable en radioprotection, d'être prudente.

Pour ce qui concerne les *produits d'activation*, le mercure a particulièrement retenu notre attention. Le mercure 203 l'emporte sur les isotopes de nombre de masse égal à 197: lorsque le mercure est irradié à saturation, l'activité du premier est un peu moindre, mais sa concentration maximale admissible (C.M.A.) dans l'atmosphère est vingt fois plus faible que celle du mercure 197.<sup>(9)</sup> On sait que le mercure donne des amalgames avec une très grande facilité, toutefois il est difficile de connaître son comportement à travers des orifices; si, par exemple, on fait passer un courant de  $\text{CO}_2$  dans un long

tube en matière plastique, bourré de charbon activé, l'activité mesurée le long du tube passe par un maximum d'autant plus éloigné de l'entrée que le volume de  $\text{CO}_2$  a été plus grand: il y a adsorption, puis élution partielle. On trouve un rapport égal à 10 entre l'activité maximale et la valeur mesurée à l'entrée du tube. Avec la quantité de mercure que nous avons dans nos réacteurs, l'isotope 203 est facile à identifier dans le  $\text{CO}_2$  par sa raie  $\gamma$  et grâce à sa période relativement longue, son activité est mesurable en chambre d'ionisation (qui, malheureusement, reste contaminée). A la suite de l'introduction accidentelle de plus d'un kilogramme de mercure, la contamination volumique de  $\text{CO}_2$  de E.D.F. 1 en mercure 203 a atteint, au mois de juillet dernier,  $3 \times 10^{-4}$  Ci/m<sup>3</sup>. Auparavant, comme à E.D.F. 2, on tournait autour de  $10^{-5}$  Ci/m<sup>3</sup>. Signalons que les rayons  $\beta$  du mercure 203 ne sont pas détectés par les sondes que nous utilisons initialement pour la recherche des contaminations de surface.

Malgré la vidange préalable, l'air résiduel contenu dans le circuit lors du remplissage en  $\text{CO}_2$  donne, lorsque le réacteur est à sa puissance nominale, une activité volumique qui, ramenée aux conditions ambiantes de température et de pression, dépasse  $10^{-2}$  Ci/m<sup>3</sup>; puis décroît au fur et à mesure de l'apport de  $\text{CO}_2$  pour compenser les fuites du circuit; cette décroissance, de plus en plus lente, met des semaines pour atteindre la valeur de  $10^{-3}$  Ci/m<sup>3</sup> qui correspond à l'activation de l'argon 40 contenu dans un  $\text{CO}_2$  encore chargé d'environ 200 volumes d'air par million (vpm). Le contrat de fourniture prévoit une teneur maximale de 100 vpm.

Pour ce qui concerne les *produits de fission* ou, plus précisément, les radionucléides engendrés par irradiation de l'uranium lui-même, il ne saurait être question de chercher à mesurer directement les plus dangereux, c'est-à-dire ceux qui, comme le strontium 90 ou le plutonium 239, ont les C.M.A. parmi les plus faibles.

Le dispositif de D.R.G. permet de suivre l'évolution d'une rupture de gaine, mais ne donne aucune indication sur la nature des éléments contaminants.

La chambre d'ionisation du D.C.C.A- $\text{CO}_2$  lorsque le réacteur fonctionne à sa puissance

nominale, ne peut déceler les variations de l'activité volumique en gaz et vapeurs, cette activité étant noyée dans celle de l'argon 41.

Le dosage de l'iode dans des filtres à charbon activé s'avère impossible: le pic principal de l'iode 131, situé à 364 keV, est dissimulé par la raie du mercure 203 à 279 keV.

Devant ces difficultés, l'un de nous s'est adressé au césium 138.

permet de déduire simplement l'activité volumique  $a_{op}$  du xénon 138 dans le circuit de  $CO_2$  de l'activité  $A_F$  du césium 138 recueillie sur le filtre et mesurée à partir du pic de 1,44 MeV. Les activités étant exprimées en curies, et le volume du  $CO_2$  ramené aux conditions ambiantes de température et de pression, on peut écrire:

$$a_{op} = 2 A_F \quad (1)$$

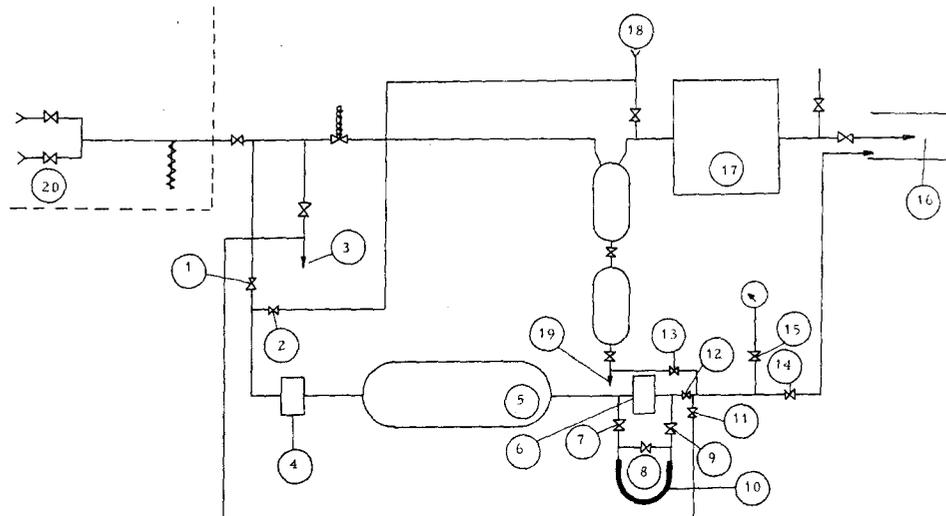


FIG. 1. Dispositif de mesure de la concentration du xénon 138 dans le  $CO_2$  à E.D.F.1. 1, vanne d'isolement (prélèvement). 2, vanne d'isolement (balayage). 3, vers les surpresseurs du dispositif de D.R.G. 4, filtre amont. 5, volume de reconstitution du césium 138. 6, filtre aval. 7, 8, 9, vannes d'isolement du manomètre. 10, manomètre en U. 11, vanne d'isolement (aval). 12, vanne de réglage du débit. 13, vanne de décompression. 14, vanne de mise à l'air libre. 15, vanne d'isolement du manomètre. 16, vers la ventilation. 17, D.C.C.A.- $CO_2$ . 18, arrivée du  $CO_2$  de balayage. 19, purge. 20, vers le circuit primaire de  $CO_2$ .

Un volume de reconstitution de  $20 \text{ dm}^3$  a été monté, avec ses accessoires, en dérivation sur le D.C.C.A.- $CO_2$  de E.D.F.1, conformément au schéma de la figure 1. La circulation est assurée par les surpresseurs du dispositif de D.R.G., sous la même pression que dans le circuit principal (25 bars). La vitesse d'écoulement à travers les filtres (de 4,5 cm de diamètre), voisine de  $17 \text{ cm/s}$ , correspond à une perte de charge de l'ordre de 70 cm d'eau (valeur satisfaisante) et assure quatorze renouvellements en 17 mm. Avec un temps de collection voisin de deux heures et demie, un tel dispositif

Les détails des calculs qui conduisent à ce résultat sont exposés en annexe (le rendement du filtre a été supposé égal à l'unité).

On trouve ainsi qu'à E.D.F.1 l'activité du xénon 138 oscille autour de  $10^{-6} \text{ Ci/m}^3$ , indépendamment de toute rupture de gaine. Si les teneurs de l'atmosphère en iode 131 et en xénon 138 étaient dans le même rapport que leurs rendements cumulatifs de fission, avec 0,5% de  $CO_2$  contaminé à  $10^{-6} \text{ Ci/m}^3$  de xénon 138, l'air contiendrait environ  $3 \times 10^{-9} \text{ Ci/m}^3$  d'iode 131.

Le tableau 2 indique, compte tenu des valeurs trouvées couramment dans le circuit, quelle

serait la contamination de l'air des locaux contenant 0,5% de CO<sub>2</sub>, et quel facteur de dilution serait nécessaire, dans l'atmosphère, pour donner la C.M.A. auprès des personnes du public. On considère trois nucléides parmi les plus importants: mercure 203, argon 41 et iode 131. On suppose qu'il n'y a aucun phénomène de filtration.

On voit qu'il y a lieu de surveiller la contamination de l'air entraînée par celle du CO<sub>2</sub>.

#### 4.3. Mise à profit de la contamination du CO<sub>2</sub>

La contamination radio-active du circuit de refroidissement d'un réacteur nucléaire est un mal inévitable; toutefois, il est possible d'en tirer parti. C'est ainsi que l'activité volumique de l'azote 16 permet de corriger le signal du

lors d'une fuite brutale de ce gaz dans un local, ou lors de l'ouverture du circuit pour intervention à l'intérieur; en l'absence d'aérosols, nous n'avons pas pu être gênés par les isotopes radio-actifs du fer, et nous n'avons pratiquement pas bénéficié du dispositif d'épuration continue du CO<sub>2</sub> par filtration.

#### 5. CONCLUSION

La connaissance de la contamination du circuit primaire de refroidissement de nos réacteurs nous permet de prendre toutes précautions pour éviter une contamination excessive des travailleurs et des personnes du public.

Pour ce qui concerne la contamination par activation, les problèmes les plus importants et les plus difficiles nous sont posés par la présence

Tableau 2. Conséquence de la contamination du CO<sub>2</sub>

Nucléide	203 <sub>Hg</sub>	41 <sub>A</sub>	131 <sub>I</sub>
Dans circuit (Ci/m <sup>3</sup> )	10 <sup>-5</sup>	10 <sup>-3</sup>	5 × 10 <sup>-7</sup>
Dans locaux (Ci/m <sup>3</sup> )	5 × 10 <sup>-8</sup>	5 × 10 <sup>-6</sup>	3 × 10 <sup>-9</sup>
C.M.A. <sup>9</sup> (Ci/m <sup>3</sup> )	6 × 10 <sup>-8</sup>	2 × 10 <sup>-6</sup>	6 × 10 <sup>-9</sup>
Locaux/C.M.A.	≈ 1	2,5	0,5
Dilution public	5000	25,000	2500

dispositif de D.R.G., afin de tenir compte des variations de la puissance ou du débit du CO<sub>2</sub>. Durant la période de démarrage de E.D.F.1, le dispositif de contrôle de la contamination de l'atmosphère des locaux en gaz radio-actifs a permis, grâce à l'argon 41, de suivre le cheminement du CO<sub>2</sub> de fuites accidentelles, alors que les appareils de mesure directe n'avaient pas encore un fonctionnement tout à fait satisfaisant; dans la campagne, les rayons  $\gamma$  de cet argon 41 aident à retrouver le "panache" et à localiser sur le sol la zone de "retombée" maximale. La présence inopinée de sodium 24 dans le circuit de refroidissement de E.D.F.1 a confirmé la déféctuosité du branchement, sur ce circuit, de la dérivation où se trouvent les batteries de filtres destinées à l'épuration continue du CO<sub>2</sub>. L'huile introduite dans le circuit a débarrassé le CO<sub>2</sub> d'aérosols, ce qui s'avère bénéfique

du mercure: nous allons nous employer à supprimer ces problèmes par suppression du mercure, plutôt que d'avoir à les résoudre.

Pour ce qui concerne les produits de fission, nous nous attachons à en suivre l'évolution dans le CO<sub>2</sub> par une mesure relativement simple. Il reste à déterminer dans quelles proportions les radionucléides les plus abondants et les plus dangereux, tels que l'iode et le mercure, suivent les gaz nobles.

Industriels, nous nous attachons à la recherche des solutions les plus simples et souhaitons la suppression des actes dont nous ne comprenons pas l'intérêt. Nous nous demandons, par exemple, s'il est logique de rechercher systématiquement un radionucléide dans les produits de la chaîne alimentaire alors qu'il n'a pu être détecté dans les circuits primaires de refroidissement des réacteurs.

## RÉFÉRENCES

1. J. P. ROUX et C. BIENVENU. *C.R. 2ème conf. utilisat. pacif. én. at.* Genève, 1958, Vol. 5, p. 298 (1958).
2. C. BIENVENU, P. PASSÉRIEUX et P. BACHER. *C.R. 3ème conf. utilisat. pacif. én. at.*, Genève, 1964, Vol. 5, p. 67 (1965).
3. J. P. ROUX et C. BIENVENU. *J. Brit. Nuclear En. Sy.* **1**, 235 (1962).
4. M. DELPLA, C. BIGEARD, L. BERTRON et E. VENTRE. 1er congrès international de l'association internationale de radioprotection, Rome, 5-10 octobre 1966, à paraître.
5. A. ROGUIN. Rapport CEA-R 2784 (1965).
6. L. FITOUSSI. Rapport CEA-n° 1598 (1960).
7. R. ESTOURNEL. Rapport CEA-n° 2205 (1962).
8. Anonyme. Service d'études générales nucléaires, EDF, étude n° EG 58-65 (1965), diffusion interne.
9. Ministre délégué chargé de la recherche scientifique et des questions atomiques et spatiales, décret n° 66-450 du 20 juin 1966 (J.O. du 30 juin 1966).

travers un récipient dans lequel il donne un fils solide, lui-même radio-actif; avant et après le récipient sont disposés deux filtres identiques, de sorte que le père pénètre seul dans le volume de reconstitution et que le second filtre recueille des noyaux fils formés dans ce volume et non désintégrés (Fig. 2).

Soit  $V$  la valeur du volume de reconstitution,  $P$  la pression, supposée uniforme, et  $d$  le débit du gaz; en mesurant les volumes dans les conditions ambiantes de température et de pression (l'atmosphère étant prise pour unité), le débit  $D$  serait:

$$D = Pd.$$

Le temps moyen mis par le gaz pour parcourir le volume de reconstitution s'écrit:

$$t_m = \frac{PV}{D}. \quad (3)$$

Considérons, dans le volume de reconstitution, une tranche de gaz de volume élémentaire

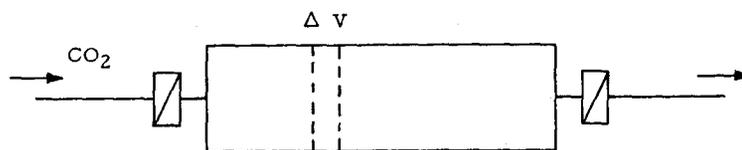


FIG. 2. Principe du dispositif de mesure: volume de reconstitution du césium 138 entre deux filtres traversés par le  $\text{CO}_2$  prélevé sur le circuit primaire.

## ANNEXE

 Mesure de l'activité du Xenon 138 dans le  $\text{CO}_2$ 

Soit un récipient rempli d'un gaz radio-actif donnant un fils, lui-même radio-actif.

L'activité du fils, contenue dans le récipient et supposé initialement nulle, est reliée à celle du père par la relation:

$$A_F = A_{0p} \frac{\lambda_F}{\lambda_F - \lambda_p} (e^{-\lambda_p t} - e^{-\lambda_F t}) \quad (2)$$

où les notations ont la signification indiquée ci-dessous:

$t$ : temps écoulé depuis l'instant initial;

$A_F$ : activité du fils au temps  $t$ ;

$A_{0p}$ : activité du père à l'instant initial;

$\lambda_F$  et  $\lambda_p$ : constantes radio-actives du fils et du père.

Considérons maintenant le père gazeux s'écoulant, mélangé à du gaz carbonique, à

$\Delta V$  (Fig. 2); dans cette tranche, l'activité du père, à l'entrée s'écrit:

$$A_{0p} = a_{0p} P \Delta V, \quad (4)$$

et celle du fils:

$$A_F = a_F P \Delta V; \quad (5)$$

$a$  représente l'activité volumique initiale du père (indices 0 et  $p$ ), ou du fils dans le récipient (indice  $F$ ), ou, ci-dessous, du fils à la sortie (indices  $s$  et  $F$ ); ces activités volumiques correspondent aux conditions ambiantes de température et de pression.

La formule (2) ci-dessus devient, d'après (4) et (5), à la sortie du volume de reconstitution:

$$a_{sF} = a_{0p} \frac{\lambda_F}{\lambda_F - \lambda_p} (e^{-\lambda_F t_m} - e^{-\lambda_p t_m}). \quad (6)$$

Écrivons que dans chaque unité de temps le nombre de noyaux du fils retenus sur le filtre

est égal aux apports par le gaz carbonique (compte tenu du rendement  $R$  de la filtration) corrigés des pertes par désintégration:

$$\frac{dN_F}{dt} = \frac{a_{sF} DR}{\lambda_F} - \lambda_F N_F,$$

équation dont la solution s'écrit:

$$N_F = \frac{a_{sF} DR}{\lambda_F^2} (1 - e^{-\lambda_F t});$$

compte tenu de (3) et (6), l'activité recueillie sur le filtre après un temps  $t$  de collection peut s'écrire:

$$A_F = a_{op} P V R (1 - e^{-\lambda_F t}) \frac{e^{-\lambda_F t m} - e^{-\lambda_p t m}}{(\lambda_p - \lambda_F) t m}. \quad (7)$$

L'expression (7) se réduit à une forme approchée:

$$A_F = a_{op} P V R \quad (8)$$

à condition que les deux facteurs suivants du

second membre de (7) soient suffisamment proches de l'unité.

$$\text{On aura: } 1 - e^{-\lambda_F t} \geq 0,95,$$

pourvu que:  $t \geq 4,3 T_F$ . (9)

Pour le second facteur, on peut sensiblement écrire la condition:

$$e^{-\lambda_p t m} \geq 0,95,$$

si, d'après (3):

$$D \geq 14 \frac{P V}{T_p}. \quad (10)$$

D'après la condition (9), la période radioactive du fils ne doit pas être trop longue pour avoir un temps de collection raisonnable; cette période ne doit tout de même pas être trop courte: le résultat du comptage du filtre manquerait de précision.

D'après la condition (10), la période du père ne doit pas être trop courte: le courant gazeux à travers les filtres ne saurait être excessif.