

TITRE : Contribution à l'irradiation de l'Am 241 présent dans le Plutonium. Risques radiologiques liés aux manipulations de l'Am 241.

AUTEURS : G. PESCAIRE - L.PITON

APPARTENANCE : CEA - BP 14 21120 IS-SUR-TILLE (FRANCE)

### I - POSITION DU PROBLEME

En fonction du taux de combustion de l'uranium, ainsi que du type de réacteur considéré, le Plutonium extrait, après retraitement du combustible, peut contenir des quantités variables de Plutonium 241. Ce dernier, en raison de sa courte période, 14, 5 ans (1), est à l'origine de quantités croissantes dans le temps, d'Américium 241, de période 433 ans.

L'émission principale de l'Américium 241 est un photon de 60 KeV émis avec un pourcentage de 36 % (Cependant, quand les quantités deviennent importantes, les raies d'énergie supérieure ne doivent pas être négligées dans les calculs des protections).

Le problème consiste à déterminer les limites supérieures des quantités d'Américium, acceptables dans un Plutonium irradié, sans dépasser les doses maximales admissibles dans des installations manipulant du Plutonium irradié en boîtes à gants classiques.

Le tableau I donne la contribution des divers isotopes présents dans un Plutonium irradié en fonction de l'âge pour une teneur initiale de 2 % en Pu 241.

TABLEAU I - Contribution de chaque isotope et débit de dose  $\gamma$  total (mrad/h) en fonction de l'âge au contact d'un lingot de Pu irradié.

Age Isotope	0	1	3	5	10	15	20
Pu 239	1140	1140	1140	1140	1140	1140	1140
Pu 240	880	880	880	880	880	880	880
Pu 242	-	-	-	-	-	-	-
Pu 241	57	54	48	43	35	26	20
U 237	0	163	147	132	103	80	60
Am 241	0	676	1923	3000	4200	7000	8400
TOTAL	2077	2913	4138	5195	6358	9126	10500

Les limites dépendent du vieillissement du Plutonium et du pourcentage initial de Pu 241 ; elles sont également liées aux protections additionnelles pouvant être mises en place sans gêne ni dépenses excessives.

Si ces limites sont dépassées quelles solutions peut-on adopter ? Automatisation, télémanipulation ou éventuellement séparation de l'Américium.

## II - METHODES DE PROTECTIONS, SOLUTIONS PROPOSEES

L'expérience et le calcul font ressortir une teneur maximale d'Américium, acceptable dans le Plutonium sans modification des installations classiques. Cette limite se situerait vers 5000 ppm (0.5 %) Ceci correspond à un vieillissement de 10 ans environ pour un Plutonium contenant initialement 1 % de Pu 241.

Si la teneur en Am 241 est inférieure à cette limite, les manipulations peuvent s'effectuer en BâG (boîtes à gants) classiques avec certaines protections supplémentaires plus ou moins légères.

- mise en place de panneaux additionnels en verre au plomb de densité moyenne,

- adoption de gants au plomb lorsque la nature et la précision des opérations le permettent,

- limitation des opérations manuelles,

- nettoyage fréquent des BâG afin d'éviter l'accumulation de dépôts de Pu-Am qui peuvent être très irradiants.

Pour des concentrations supérieures à 5000 ppm, les DMA (doses maximales admissibles) annuelles risquent d'être dépassées, en particulier pour les mains et avant-bras, car les mesures d'irradiation montrent que les temps d'exposition sont 10 fois environ plus limitatifs pour les extrémités que pour l'organisme entier. On peut alors envisager d'autres solutions :

- automatisation des chaînes de fabrication : par exemple par l'adoption de machines à commande numérique, la télécommande des transferts,

- manipulation à distance voire télémanipulation à certains postes de travail.

Ces aménagements se heurtent souvent à certaines difficultés; d'une part, ils ne conviennent pas à tous les postes, d'autre part, les tolérances de précisions ne le permettent pas toujours, enfin, les limitations en masse des unités de travail exigent souvent des transferts entre cellules indépendantes.

Il reste une possibilité: l'extraction de l'Américium afin de rendre le Plutonium réutilisable sur les installations classiques. L'Américium récupéré ne pose pas, à court terme, de problèmes de stockage insolubles; à long terme cependant, des solutions doivent être étudiées.

## III - RESULTATS EXPERIMENTAUX

### 1) Facteurs d'atténuation de quelques matériaux de protection

TABLEAU II

Nature	Pu à 3000 ppm Am	Pu à ≈ 4 % Am	Am pur (nitrate)
Plexiglass (ép. = 8 mm)	1,65		1,2
Sandwich verre : 1,4 cm plexi : 0,8 cm plomb : 0,2 cm	≈ 50 (3)		
Gant ordinaire au néoprène	≈ 1,5		
Gant au plomb	≈ 4	1,8	
Plomb (2mm)		200 (1) 180 (2)	400 (1)
Plomb (4mm) (4)			650 (1) 200 (2)

- Indices (1) en phase solide  
du (2) en phase liquide  
Tableau (3) ce facteur est réduit par les fuites au niveau des ronds de gants  
(4) la facteur d'atténuation du plomb varie avec son épaisseur en raison de la largeur du spectre d'énergie

2) Unité expérimentale de séparation

A) Principe : résines échangeuses d'ions avec fixation du Pu et entraînement de l'Américium. L'Américium récupéré est ultérieurement concentré par un évaporateur en continu et stocké définitivement à la concentration désirée. Le cycle porte sur 800 grammes environ de Pu et dure une quinzaine d'heures pour les phases fixation-élution.

B) Protection : La séparation s'effectue en milieu liquide dans des colonnes en pyrex atténuant sensiblement l'irradiation. De plus, une BâG " transfert " permet la commande à distance. Les stockages intermédiaires et définitif sont dans un local protégé par 20 cm de béton avec une protection supplémentaire de 10 cm de plomb autour du stockage définitif d'Américium très concentré. Compte tenu du nombre réduit d'opérations manuelles, les doses reçues par les agents, restent en dessous des DMA, le poste le plus pénalisant étant l'évaporateur lors des reconcentrations finales.

C) RESULTATS

- Débits maximaux aux postes principaux  
. haut de la colonne de résines :  $\approx 260$  mrad/h  
. contact de la BâG évaporation :  $\approx 100$  mrad/h  
. dose intégrée par agent par cycle :  $\approx 45$  mrad

3) Débits de dose calculés au contact d'un container de 500 g d'Am O<sub>2</sub>

TABLEAU III

	Source nue	Ecran de plomb (ép. 0,1 cm)	Ecran de plomb (ép. 1 cm)	Ecran de Plomb (ép. 5 cm)
$\gamma$ (mrem/h)	$6.10^5$	2640	390	2
$^{107}\text{Po}$ (mrem/h)	1400	1400	840	200
TOTAL (mrem/h)	$6,014.10^5$	4040	1230	202

#### IV - CONCLUSIONS

Le Plutonium irradié exige non seulement une surveillance rigoureuse de la contamination, mais aussi une attention accrue au niveau des postes de travail. Selon les procédés de fabrication et de manipulation, la teneur en Americium, les protections en place, les équivalents de dose peuvent être prohibitifs soit au niveau des mains, soit au niveau de l'organisme entier.

Pour des installations à protections légères, la teneur en Americium qui nous paraît être la limite supérieure en routine se situerait aux environs de 5000 ppm.

Seule une étude de poste préalable permettra d'ajuster cette valeur. Au delà d'une certaine limite et en fonction d'une réutilisation du Plutonium, la séparation Pu-Am s'avèrera nécessaire. Les protections autour de l'installation de séparation seront fonction du procédé choisi.

L'Americium obtenu soit en phase solide, soit en phase liquide pose des problèmes pour son stockage en particulier sous forme  $\text{AmO}_2$ , car dans ce cas l'irradiation neutronique due aux réactions ( $\alpha$ ,  $\eta$ ) devient importante.

#### V - REFERENCE

- 1) Revaluation of the  $\gamma$  ray energies and absolute branching intensities of  $\text{U}^{237}$ ,  $\text{Pu}^{238-239-240-241}$  and  $\text{Am}^{241}$   
R. GUNNINK, J.E EVANS and A.L PRINDLE. UCRL 52 139  
Octobre 1976