

CONSÉQUENCES DU POINT DE VUE DE LA RADIOPROTECTION D'UN INCIDENT DE CONTAMINATION ÉTENDUE À LA PILE EL.3 DU CENTRE D'ÉTUDES NUCLÉAIRES DE SACLAY

L. FITOUSSI et P. LEBOULEUX

Commissariat à l'Énergie Atomique, Centre d'Études Nucléaires de Saclay*

Résumé—Un incident mécanique sur une cellule présentant une rupture de gaine a eu comme conséquence un incident radio-actif. Cet incident s'est produit pendant le transfert de cette cellule de la cuve de la pile, à la cuve de stockage. Il en est résulté une émission de produits de fission qui s'est prolongée pendant plusieurs jours, et une contamination étendue des aires de travail et des parois du bâtiment de stockage.

Après avoir indiqué les résultats des mesures de contamination effectuées dans les fluides de refroidissement de la pile, dans l'air, sur les surfaces et à la cheminée de l'installation, les auteurs présentent leurs observations sur l'émission des produits de fission et leur comportement dans les conditions de l'incident.

D'autre part, les auteurs présentent les conséquences de l'incident du point de vue de la radioprotection.

I. INTRODUCTION

L'objet de cette communication est de présenter quelques observations sur les conséquences d'un incident survenu à la pile EL.3 du Centre d'Études Nucléaires de Saclay. Il s'agit d'un incident de rupture de gaine d'un élément de combustible qui a conduit à une contamination radio-active très étendue parce qu'il s'est conjugué avec un incident mécanique survenu au cours des déplacements de la cellule incriminée.

Cet incident est caractéristique parce qu'il est la conséquence d'une suite de deux circonstances dont les probabilités d'occurrence sont relativement faibles.

II. CIRCONSTANCES DE L'INCIDENT

2.1. Présentation de la pile EL.3 (Fig. 1)

La pile EL.3 est une pile à eau lourde. Sa puissance nominale est de 15 MW pour un flux thermique maximal de 10^{14} neutron/cm² . s. Cette pile sert en particulier à tester les combustibles nucléaires et son chargement com-

prend 15 à 20% de cellules expérimentales. C'est sur une cellule de ce type qu'est survenue la rupture de gaine.

La mise en place et l'extraction des cellules s'effectue pile à l'arrêt, avec une hotte blindée. Cette hotte est munie d'un dispositif autonome de refroidissement des cellules (Fig. 2).

Les cellules extraites sont transportées dans le bâtiment de stockage adjacent au bâtiment de la pile. Avant stockage, les cellules sont examinées aux rayons X, en particulier, celles présentant une rupture de gaine (Figs. 3 et 4).

2.2. Description de l'incident

L'incident s'est produit au cours d'un examen radioscopique d'une cellule ayant un taux de combustion de 3 650 MWj/t et présentant une rupture de gaine (cf. annexe I). La cellule, dont le dispositif d'accrochage s'est détérioré, est tombée dans le puits du sas d'observation et s'est coincée entre le sas d'observation et la hotte blindée.

La partie supérieure de la cellule (sans uranium) est restée engagée dans la hotte blindée.

* B.P. No. 2, gif S. Yvette 91, France.

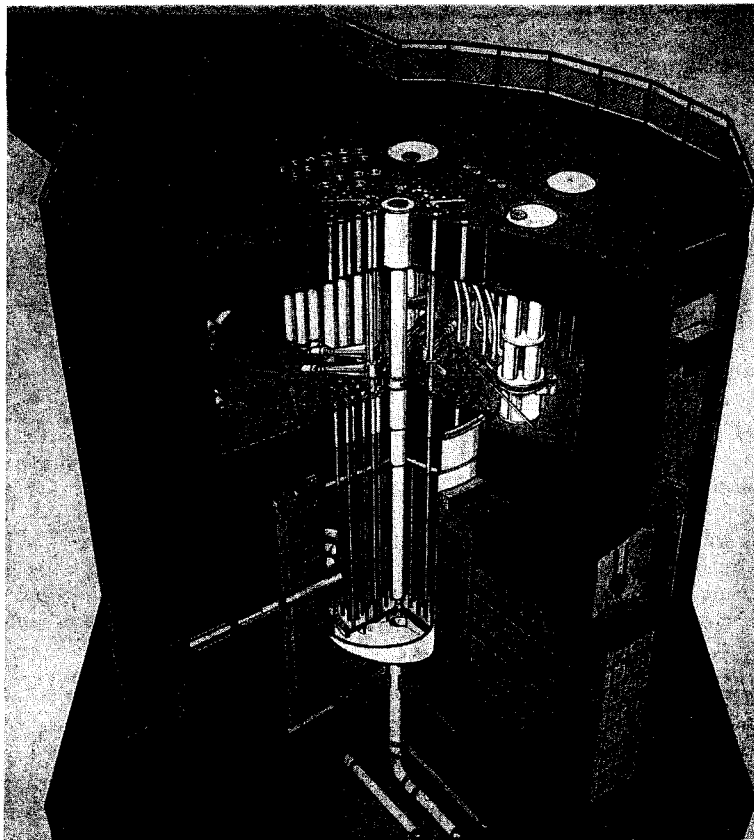


FIG. 1. Vue éclatée du bloc pile.

L'échauffement du combustible, qui ne peut être refroidi dans cette position, a provoqué une contamination atmosphérique due à un dégagement important de produits de fission qui a cessé lorsque le puits du sas d'observation a été rempli d'eau.

La cellule est transférée successivement dans deux alvéoles de la cuve de stockage, pour cellules avariées, car la première alvéole de stockage s'est avérée non étanche et insuffisamment refroidie (Fig. 5).

C'est au cours de ces opérations que le bâtiment de stockage, isolé fort heureusement du hall de la pile, a été presque entièrement contaminé.

III. CONTRÔLES DE RADIOPROTECTION

3.1. Contamination atmosphérique

Pendant toute la durée des opérations, la contamination atmosphérique a été contrôlée

par des prélèvements effectués sur papier filtre et charbons actifs. Les résultats obtenus sont portés sur la courbe de la Fig. 6.

A partir de ces résultats, l'activité totale de l'iode 131 libérée dans l'atmosphère du bâtiment a été évaluée à environ 0,1 à 0,2 Ci. Cette valeur a été corroborée par les mesures effectuées dans l'air rejeté par la cheminée de la pile qui ont donné 0,17 Ci. Ces dernières mesures ont montré que l'activité des produits de fission solides rejetée dans l'atmosphère était inférieure à $2 \cdot 10^{-4}$ Ci en raison de l'efficacité des filtres du circuit d'extraction d'air.⁽¹⁾

Néanmoins, des contrôles par prélèvements d'herbe ont été effectués autour du Centre d'Études Nucléaires de Saclay, dans la direction des vents dominants. Comme prévu, ces prélèvements n'ont pas permis de déceler la présence de produits de fission. Par contre, des

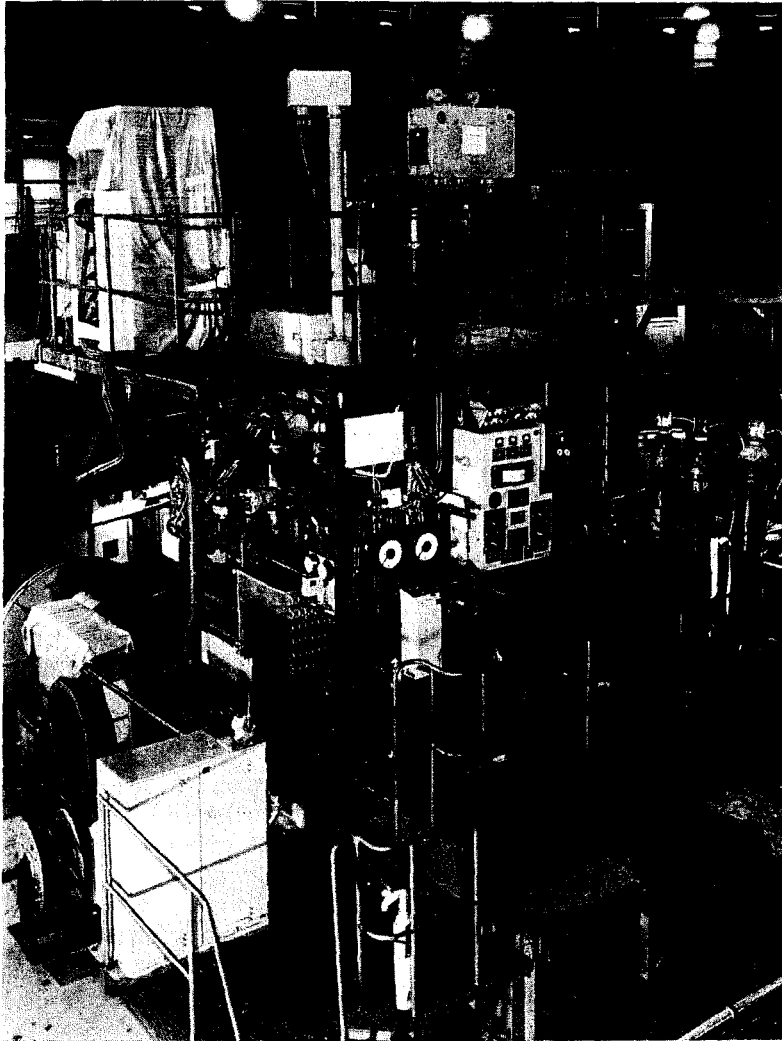


FIG. 2. Hotte de défournement.

prélèvements de thyroïde de bovins ont donné des résultats positifs (jusqu'à 48 pCi/g). Toutefois, rien ne permet de conclure actuellement que cette contamination ait été liée aux rejets d'iode à partir de EL.3.

REMARQUE: Du fait du taux de combustion relativement élevé de l'uranium, la quantité des isotopes du plutonium formé dans le combustible était importante: de l'ordre de 1 mg par gramme d'uranium. En admettant un taux d'émission du plutonium de l'ordre de 1% de la quantité formée, on calcule un risque

potentiel de contamination par le plutonium de l'ordre de 2 à 10% du risque potentiel dû à l'iode 131. Cependant, dans les mesures faites a posteriori sur les prélèvements, il ne nous a pas été possible de mettre en évidence le plutonium.

3.2. Contamination des surfaces

Par suite de l'émission importante des produits de fission, de fortes contaminations des surfaces de travail, des parois et du plafond du bâtiment ont été observées (tableau 1). Les

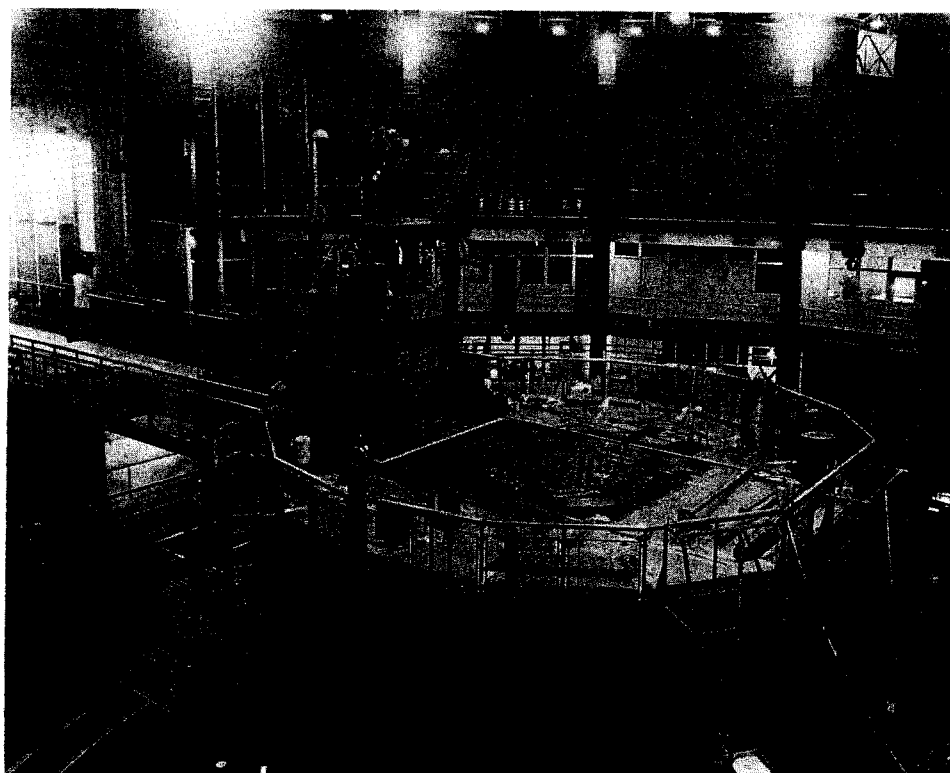


FIG. 3. Hotte de défournement sur le toit de la pile.

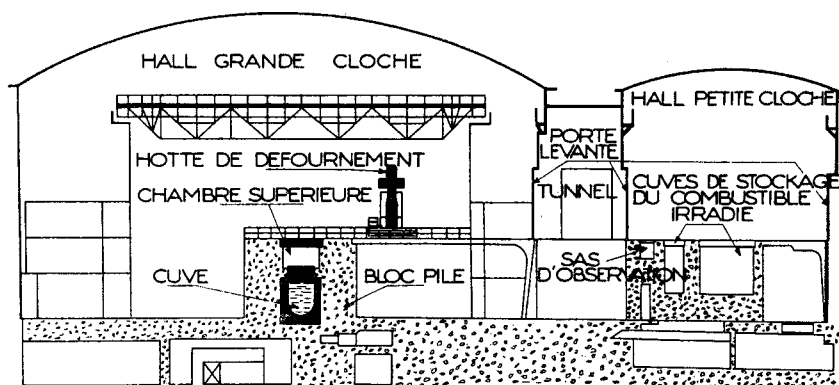


FIG. 4. Coupe schématique du bâtiment de la pile et du bâtiment de stockage.

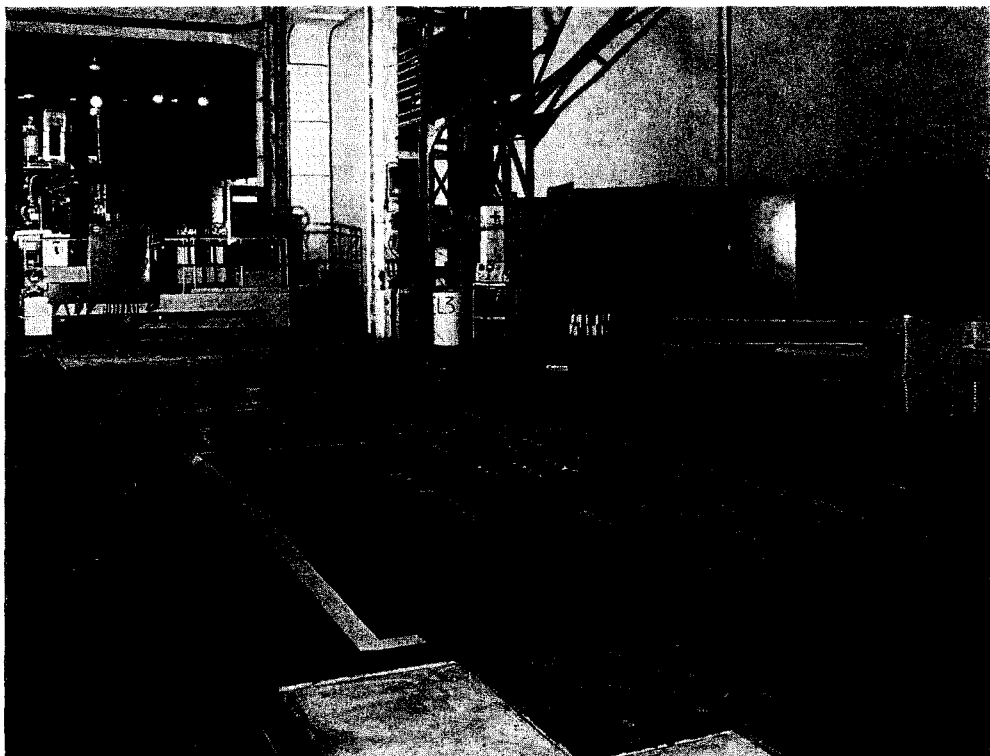


FIG. 5. Alvéoles des cuves pour éléments irradiés du bâtiment de stockage.

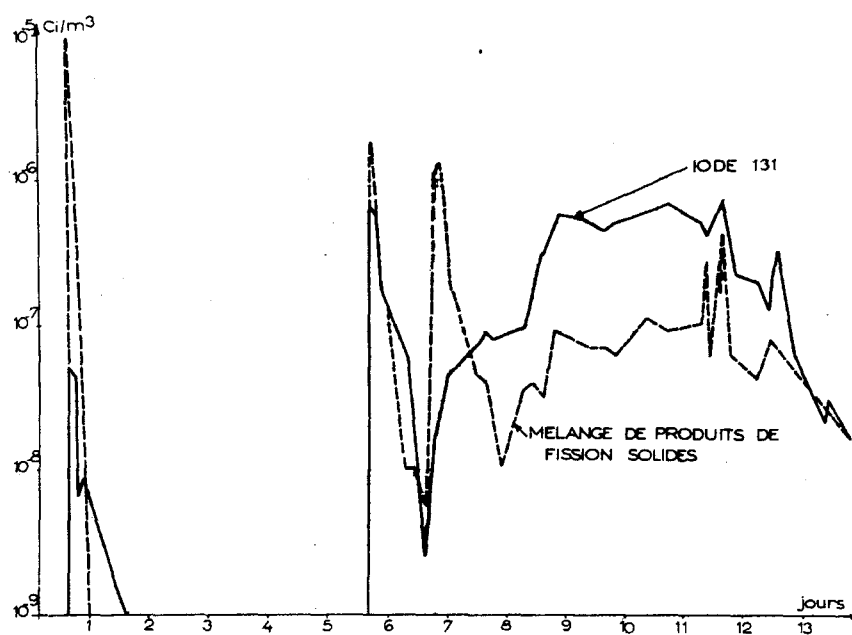


FIG. 6. Évolution de la contamination atmosphérique dans le bâtiment de stockage.

contaminations les plus importantes ont été mesurées sur les aires de travail (10^{-5} à 10^{-3} Ci/dm²) et sur la hotte blindée de défournement des cellules. À l'intérieur de cette hotte dans le logement de la cellule, la pollution était telle que l'on a mesuré une intensité d'irradiation de l'ordre de 100 rad/h.

IV. ÉTUDES DES RÉSULTATS DES MESURES DE LA CONTAMINATION

Les résultats des mesures effectuées sur les prélèvements atmosphériques et de surfaces nous ont conduits à formuler quelques observations sur le comportement des produits de fission.

Pour pousser plus à fond nos investigations concernant l'évolution de l'incident, nous avons été conduits à effectuer des prélèvements dans les circuits d'eau lourde et d'hélium de la pile EL.3, ainsi que dans le puits du sas d'observation et la première alvéole de stockage de la cellule.

4.1. Émission des produits de fission dans les circuits de la pile

À partir des résultats de ces prélèvements donnés au tableau 2 et d'hypothèses simples, nous avons calculé la quantité d'uranium mise en jeu au fur et à mesure de l'évolution de l'incident et les pourcentages des produits de fission émis dans l'eau lourde.

La quantité d'uranium impliquée dans la rupture de gaine a été tout d'abord calculée en supposant un taux d'émission de 100% des gaz de fission et le passage de l'activité totale de ces gaz dans l'atmosphère en hélium de la cuve.^(3-5,8) Avec ces hypothèses, la masse d'uranium calculée est de 10 grammes. On en a déduit les activités des autres produits de fission formés.⁽²⁾

En fait, une rupture de gaine n'entraîne pas obligatoirement la fusion de l'uranium. Il en résulte que le taux d'émission réel des gaz de fission est inférieur à 100%. En admettant un taux d'émission compris entre 20 et 70%^(9, 10) la quantité d'uranium touchée par la rupture de gaine est comprise entre 15 et 50 g.

Les pourcentages d'émission des produits de fission dans l'eau lourde au moment de la rupture de gaine peuvent être compris entre les deux valeurs mentionnées dans le tableau 2.

Mis à part le taux d'émission du ¹³⁷Cs qui

peut paraître élevé, ces résultats semblent en assez bon accord avec les valeurs généralement admises.

4.2. Comportement des produits de fission libérés dans le bâtiment

4.2.1. Les résultats concernant ¹³¹I et ¹³⁷Cs des analyses effectuées sur les prélèvements d'eau du puits du sas d'observation et de la première alvéole de stockage ont montré que les activités de ces deux radio-éléments libérées successivement dans ces deux volumes étaient 5, puis 40 fois, supérieures à celles libérées dans l'eau lourde.

Ces résultats ont donc confirmé l'aggravation progressive de l'incident en raison du mauvais refroidissement de l'uranium dû aux mauvaises conditions de stockage. Les quantités d'uranium mises en jeu évaluées à partir de ces deux radio-éléments, comparativement aux résultats obtenus dans l'eau lourde sont respectivement de l'ordre de 10² et de 10³ grammes. La valeur maximale calculée de 2,3 kg a été confirmée par les examens visuels et radiographiques qui ont été effectués ultérieurement.

4.2.2. Les constatations les plus marquantes du comportement des produits de fission libérés dans le bâtiment sont les suivantes:

—Mis à part l'iode 131, nous avons trouvé, dans l'atmosphère et sur les surfaces, les mêmes produits de fission dans les mêmes proportions relatives moyennes.

Ces proportions relatives moyennes, en prenant le couple ¹⁴⁰Ba-¹⁴⁰La comme unité, sont les suivantes:

⁹⁵ Zr- ⁹⁵ Nb	1,2
¹⁰³ Ru	0,5
¹⁴⁰ Ba- ¹⁴⁰ La	1
¹⁴¹ Ce	0,5

—L'iode 131 dont la présence dans l'atmosphère a été mise en évidence et suivie régulièrement n'a pu être décelé sur les surfaces contaminées. Les raisons évoquées pour rendre compte de ce résultat sont d'une part, la faible vitesse de dépôt^(6, 7) et, d'autre part, la difficulté de le prélever sur des surfaces par simple frottis.

—Les Césium 134 et 137 n'ont pas été mis en évidence dans l'atmosphère du bâtiment,

bien que les activités mesurées dans l'eau lourde, les eaux du puits du sas d'observation et de la première alvéole de stockage sont relativement importantes.

V. CONSÉQUENCES DE L'INCIDENT DU POINT DE VUE DE LA RADIOPROTECTION

5.1. Irradiation externe et interne du personnel

Les différentes opérations de transfert et de stockage de la cellule défectueuse ont nécessité l'intervention de 49 personnes. Une réglementation stricte des conditions de travail a conduit à des irradiations externes relativement faibles puisque pour la durée des opérations (environ 10 jours de travail) 47 personnes ont subi une irradiation inférieure à 300 mrem et deux personnes ont subi respectivement 315 et 550 mrem* (cf. annexe II).

Les contaminations internes ont également été faibles. En général, elles ont été subies le premier jour au cours de la brusque émission de produits de fission, alors que le personnel ne portait qu'un appareil respiratoire filtrant. Les contaminations internes mesurées par le Service Médical ont été inférieures à 50 CMA.h et le plus souvent de l'ordre de 1 CMA.h.†

5.2. Enseignements acquis à la suite de l'incident

Des enseignements utiles ont été acquis à la suite de cet incident. Ces enseignements concernent l'équipement des locaux, l'équipement du personnel, les matériels et les méthodes de mesure en radioprotection (cf. annexe III).

Quoique cet incident n'ai eu que des conséquences très limitées concernant les irradiations externes et internes du personnel, il a pris une ampleur inhabituelle par sa durée, les taux de contamination atteints, l'importance des

surfaces contaminées et le nombre des personnes impliquées.

Il convient donc d'être extrêmement vigilant en cas d'incident même apparemment mineur, survenant sur des matériaux présentant des risques radio-actifs importants.

Une fois de plus, nous constatons, que des vérifications minutieuses et systématiques, tant sur les projets d'appareillage que sur les méthodes de travail, peuvent dans certains cas économiser beaucoup de temps et d'argent même si à la longue, elles peuvent apparaître fastidieuses et inutiles.

ANNEXE I

Caractéristiques de la cellule

Combustible: Uranium enrichi à 1,6% allié à du molybdène (0,22%), du fer (0,03%) et du chrome (0,11%)

Poids de combustible: 12,4 kg (soit environ 3,1 kg par cartouche)

Taux de combustion: 3 650 MWj/t

La rupture de gaine a été signalée le 28 Octobre 1965 à 9h 25 par le dispositif de détection de rupture de gaine, alors que la pile fonctionnait à 4 MW depuis 9h 07. Cette alarme a provoqué l'arrêt de la pile par chute des barres de sécurité.

Auparavant, la pile était à l'arrêt depuis le 21 Octobre 1965 à 18h.

ANNEXE II

Conditions de travail pendant les interventions dans le bâtiment de stockage

1. Les conditions de travail dans le bâtiment de stockage ont été réglementées pour limiter l'irradiation externe et la contamination des équipes d'intervention.
2. Les équipes d'intervention étaient constituées de 3 agents du Service d'exploitation de la pile et d'un agent du Service de protection contre les radiations.
3. Le temps de travail par équipe était de l'ordre de $\frac{1}{4}$ d'heure d'une part, pour limiter l'irradiation externe et, d'autre part, en raison de l'autonomie de 20 minutes conférée par

* Les niveaux d'irradiation mesurés, dus à la présence des gaz de fission, à la contamination des surfaces et des fuites de rayonnement, étaient généralement inférieurs à 40 mrad/h. Une seule intervention de très courte durée n'intéressant que les mains et les avant-bras, a dû être effectuée dans une intensité d'irradiation de 70 rad/h.

† La CMA pour l'iode 131 est de $4,5 \cdot 10^{-9}$ Ci/m³ (réglementation EURATOM) 1 CMA.h correspond à une quantité inhalée de $5,6 \cdot 10^{-9}$ Ci.

Tableau 1. Contamination des Surfaces Dans le Bâtiment de Stockage

Zone contaminée	Surface intéressée m ²	Taux de contamination Ci/dm ² ⁽²⁾
Niveau + 7 m ⁽¹⁾	130	10 ⁻⁵ à 10 ⁻³
Niveau 0	200	10 ⁻⁶ à 10 ⁻⁵
Niveau -6 m	200	10 ⁻⁷ à 10 ⁻⁶
Pont roulant	30	10 ⁻⁶ à 10 ⁻⁴
Plafond (+ 22 m)	400	10 ⁻⁶
Parois verticales	1 500	10 ⁻⁷

⁽¹⁾ Niveau où les travaux étaient effectués.⁽²⁾ Radioéléments identifiés ⁹⁵Zr-⁹⁵Nb-¹⁰³Ru-¹⁴⁰Ba-¹⁴⁰La-¹⁴¹Ce

Tableau 2. Émission des Produits de Fission dans les Circuits de la Pile El.3 Lors de la Rupture de Gaine

Radio éléments	Activité volumique Ci/m ³		Pourcentage d'émission dans D ₂ O	
	Circuit He	Circuit D ₂ O	I	II
¹³³ Xe	2,8.10 ⁻¹			
¹³⁵ Xe	2,3.10 ⁻²			
^{85m} Kr	2,9.10 ⁻³			
⁸⁸ Kr- ⁸⁸ Rb	1,5.10 ⁻³			
⁹⁵ Zr- ⁹⁵ Nb		6.10 ⁻³	5	1-3
⁹⁷ Zr- ⁹⁷ Nb		9.10 ⁻³	10	2-6
¹⁰³ Ru		4,7.10 ⁻²	10	2-8
¹³¹ I		5,8.10 ⁻²	20	4-13
¹³⁷ Cs		7.10 ⁻³	50	10-35
¹⁴⁰ Ba- ¹⁴⁰ La		3,1.10 ⁻²	2	0,5-1,5
¹⁴¹ Ce		4,2.10 ⁻²	5	1-4

I. En supposant un taux d'émission des gaz rares de 100% (fusion uranium)

II. En supposant un taux d'émission des gaz rares de 20 à 70%. ^(9, 10)

les bouteilles d'air des appareils respiratoires.

- Pour les interventions effectuées sur la cellule avariée, l'emploi d'un scaphandre en matière plastique recouvrant les vêtements de travail et l'appareil respiratoire isolant était indispensable pour limiter la contamination radio-active du personnel (Fig. 7). Cependant, ce scaphandre n'était pas revêtu pour les travaux de préparation sans intervention sur la cellule, afin d'augmenter le rendement du personnel.

ANNEXE III

Mesures envisagées consécutives aux enseignements acquis à la suite de l'incident

Équipement des locaux.

- Aménagement de vestiaires spéciaux pour le bâtiment de stockage
- Mise en place d'un dispositif de ventilation autonome à efficacité élevée dans le bâtiment de stockage
- Nécessité d'une possibilité d'isolement des zones de travail dans les bâtiments de pile

pour éviter la généralisation de la contamination à la suite d'incident de ce type.

Équipement du personnel. Un risque grave d'asphyxie est apparu dans l'utilisation de l'appareil respiratoire isolant porté à l'intérieur du scaphandre. Il a été décidé, d'une part, de revoir le dispositif de sécurité de l'appareil isolant signalant l'épuisement de la réserve d'air, et,

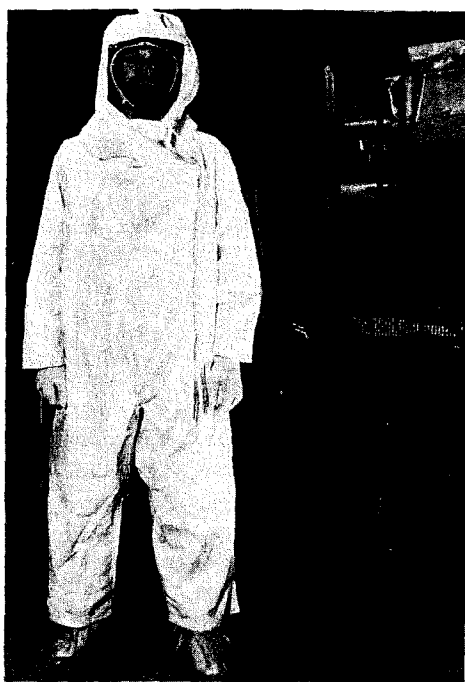


FIG. 7. Scaphandre utilisé pendant les interventions dans le bâtiment de stockage.

d'autre part, d'utiliser un autre type de scaphandre (fig. 8).

Matériels et méthodes de mesure en radioprotection.

- Nécessité d'une réserve importante de matériel de radioprotection à stocker dans des armoires facilement accessibles et protégées contre la contamination radioactive.
- Mise en évidence des risques potentiels des isotopes du plutonium dans le cas des cellules de combustibles présentent des taux de combustion élevés.
- Mesure des contaminations déposées sur

les surfaces à l'aide de prélèvements effectués sur papier gommé (méthode analogue à celle utilisée pour les retombées des explosions nucléaires) et par mesure directe par spectrométrie γ .

RÉFÉRENCES

1. L. FITOUSSI et P. LEBouleux. Étude de la radio-activité rejetée par les piles EL.2 à EL.3 du CEN.S—Colloque International sur la pollution radio-active des milieux gazeux. Saclay 1963.
2. J. O. Blomeke et M. F. Todd. Uranium 235 fission product production as a function of thermal neutron flux, irradiation time, and decay time. ORNL 2127.
3. J. M. Lavie et A. Doury. Évaluation des risques radio-actifs liés au fonctionnement d'une installation nucléaire. Rapport CEA n° 1724 (1960).



FIG. 8. Type de scaphandre dont l'emploi a été retenu pour les interventions ultérieures.

4. F. T. BINFORD. Étude de quelques problèmes liés au dégagement accidentel de produits de fission provenant d'un réacteur nucléaire. Colloque International sur la pollution radio-active des milieux gazeux. Saclay 1963.
5. J. R. BEATTIE. An assessment of environmental hazards from fission products releases. UKAEA AHSB(S)—R 64 (1961).
6. J. F. CROFT et R. S. ILES. Experimental release of radio-Iodine in the Zenith Reactor containment. AEEW R 172 (1962).
7. J. F. CROFT, R. S. ILES et R. E. DAVIS. Experiments on the surface deposition of airborne iodine of high concentration. AEEW R 265 (1963).
8. Theoretical possibilities and consequences of major accidents in large nuclear power plants. USAEC report Wash. 740 (1957).
9. J. DADILLON. Étude de la contamination libérée par la fusion de combustible dans le cœur d'une pile piscine—Expériences I et II à Cabri. Report interne. SESR/EDC 66-15.
10. F. R. FARMER. The evaluation of power reactor sites. VII° Congresso Internazionale Nucleare. Roma 11/17/6/62.