

2

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE
INSTITUT DE PROTECTION ET DE SURETE NUCLEAIRE
DEPARTEMENT D'ANALYSE DE SURETE



P4

RAPPORT DAS N° 140

**IMPORTANCE RELATIVE DES DIFFERENTS RADIONUCLEIDES
POUR LES CONSEQUENCES RADIOLOGIQUES**

D. MANESSE*

**SFRP. Meeting on migration and confinement of
radioactive products in water cooled reactors
Saclay (France) 18 Dec 1984
CEA-CONF--7920**

PSN/DAS

RAPPORT DAS N° 140

**IMPORTANCE RELATIVE DES DIFFERENTS RADIONUCLEIDES
POUR LES CONSEQUENCES RADIOLOGIQUES**

D. MANESSE*

**SFRP. Meeting on migration and confinement of
radioactive products in water cooled reactors
Saclay (France) 18 Dec 1984
CEA-CONF--7920**

*CEA/IPSN/DAS

SOCIETE FRANCAISE DE RADIOPROTECTION

MIGRATION ET CONFINEMENT DES PRODUITS RADIOACTIFS

DANS LES REACTEURS A EAU SOUS PRESSION

IMPORTANCE RELATIVE DES DIFFERENTS RADIONUCLEIDES
POUR LES CONSEQUENCES RADIOLOGIQUES

SACLAY

18 DECEMBRE 1984

IMPORTANCE RELATIVE DES DIFFERENTS RADIONUCLEIDES

POUR LES CONSEQUENCES RADIOLOGIQUES

D. MANESSE

CEA/IPSN/DAS/SAER

I- INTRODUCTION

Les précédents exposés ont montré comment, en situation accidentelle, les produits radioactifs pouvaient être émis à partir du combustible et comment ils se comportaient dans les différents milieux et à travers les différentes barrières prévues pour éviter ou réduire leur émission dans l'environnement.

Cet exposé se limitera aux situations accidentelles sur les réacteurs à eau sous pression (REP) et cherchera, pour un certain nombre de termes-sources, à évaluer l'importance relative des différentes familles de produits radioactifs dans les calculs de conséquences radiologiques.

II - INVENTAIRE DES PRODUITS RADIOACTIFS DANS UN REACTEUR

Les principales sources de produits radioactifs (essentiellement les produits de fission -PF- mais aussi les actinides et les produits de corrosion) dans un REP sont le coeur, le combustible irradié stocké en piscines, le stockage des effluents gazeux et le circuit primaire. En se basant sur les seuls gaz rares les activités potentielles en jeu sont les suivantes pour un REP de 900 MWe :

Coeur (22 000 MWj/t, 1h de refroidissement) :
3,3.10⁸Ci (1,2.10¹⁹Bq)

Combustible stocké en piscine (1/3 coeur, 33 000 MWj/t,
4j de refroidissement) :
4,2.10⁷Ci (1,5.10¹⁸Bq)

Stockage d'effluents gazeux :
5.10⁴Ci (1,9.10¹⁵Bq)

Circuit primaire :
1.10⁴Ci (3,7.10¹⁴Bq)

La gravité potentielle d'un accident est directement liée à la quantité de produits radioactifs pouvant être relâchée et, d'après les ordres de grandeurs précités, il est clair que seuls les accidents affectant le coeur ou le stockage de combustible peuvent présenter un risque important pour l'environnement. Les accidents affectant le stockage de combustible sont à cinétique relativement lente, par contre ceux affectant le coeur peuvent avoir une cinétique rapide. Ces derniers sont des accidents de faible probabilité mais les conséquences radiologiques associées, en cas de défaillance du confinement, peuvent être importantes et ces accidents contribuent fortement au risque lié à l'exploitation des réacteurs.

Le tableau I présente, regroupés par familles physico-chimiques, les masses et les activités par élément des PF et des actinides présents dans le coeur d'un REP de 900MWe. Ce regroupement des PF en familles est basé sur des comportements très voisins des PF lors de l'émission hors du combustible, lors des transferts dans l'installation et aussi souvent lors du transfert dans l'environnement jusqu'à l'homme.

III - LE TERME-SOURCE

On désigne généralement par terme-source les activités émises hors de l'installation lors d'un accident. Pour pouvoir calculer toutes les conséquences, il faut de plus l'ensemble des grandeurs servant à caractériser cette émission : mode de rejet, débit, forme physico-chimique...

Pour un certain nombre d'utilisations (comme par exemple l'aide au choix des sites, la mise au point des plans d'urgence) l'expression terme source ne s'applique pas à une séquence accidentelle précise mais à une famille d'accidents.

Historiquement les Etats-Unis ont proposé un certain nombre de termes sources dans les rapports WASH 1400 (1957), 10 CFR 100 et TID 14844 (années 1960) et le RG.1.4 (années 1970). Le rapport WASH 1400 a pour les REP, en vue d'une étude générale du risque, groupé les différents rejets possibles en 9 catégories (avec les probabilités associées) de PWR1 (90% des gaz rares et 70% des iodes relâchés) à PWR9 (3.10^{-4} % des gaz rares et 1.10^{-5} % des iodes).

L'IPSN a adapté aux REP français un certain nombre de séquences du WASH 1400 et a ainsi défini les termes-sources S1, S2 et S3, représentatifs d'accidents graves impliquant la défaillance des systèmes de sauvegarde, la fusion du coeur et la défaillance du confinement (enceinte hors-sol ou radier).

IV - LES VOIES D'EXPOSITION

En se limitant aux rejets par la voie atmosphérique, qui apparaissent à la fois comme les plus probables et comme les plus rapides pour atteindre l'homme, les conséquences radiologiques résultant du calcul des doses par les différentes voies d'exposition possibles:

- exposition externe par le panache et par les dépôts sur le sol,
- exposition interne par inhalation (panache et remise en suspension) et par ingestion (chaîne alimentaire).

De façon générale la dose à un organe spécifique j est calculée de la façon suivante:

$$D_j = \sum_i Q_i \times DA_i \times FU_{ij} \times FCD_{ij} \quad (1)$$

avec : D_j : dose,
 Q_i : quantité rejetée,

DA_i : facteur de dispersion atmosphérique, comprenant les divers appauvrissements,

FU_{ij} : facteur d'"usage" (temps passé, protection des habitations, débit respiratoire, régime alimentaire...),

FCD_{ij} : facteur de conversion de dose,

et i est l'indice courant pour les différents isotopes ou les différentes familles.

Le facteur temps intervient à tous les niveaux : refroidissement du combustible, cinétique d'émission, temps de transfert, durée de séjour, temps d'intervention, durée d'engagement de dose, effets à court ou à long terme

L'importance relative des différentes familles de produits radioactifs ne peut s'apprécier qu'en spécifiant bien tous les paramètres (en particulier temps et organes) pris en compte dans les calculs de conséquences.

V - ESTIMATION DE L'IMPORTANCE RELATIVE DES DIFFERENTES FAMILLES DE PRODUITS RADIOACTIFS

Cette importance relative va dépendre de différents facteurs évoqués dans les paragraphes précédents et résumés ci-dessous :

- l'inventaire initial en produits radioactifs,
- l'émission à partir du combustible,
- les transferts et passages des barrières dans l'installation,
- les conditions de rejet (en particulier les formes physico-chimiques,
- la distance au point de rejet,
- les modes d'exposition et les organes considérés,
- le temps (pour la quasi-totalité des facteurs précédents).

Après cette énumération, il est évident qu'il apparaît difficile de fournir, de façon toute à fait générale, des indications précises. Néanmoins il est possible d'essayer de déterminer des ordres de grandeur, qui seront toujours basés sur les REP.

V.1. Première estimation pour les produits volatils

De la formule (1) on peut dégager le produit (activité x facteur de conversion de dose) et comparer les valeurs obtenues en supposant que toutes les familles de PF volatils sont émises hors du réacteur dans

les mêmes proportions. Ces valeurs sont normalisées par rapport à l'iode et le temps de refroidissement choisi est de 5h.

	PANACHE	INHALATION THYROIDE	DEPOT (COURT TERME)
IODES	1	1	1
GAZ RARES	0,13	0	0
CESIUMS	0,04	0,004	0,04
TELLURES	0,07	0,23	0,08

De ce tableau on peut déjà conclure à l'importance des iodes s'ils sont émis dans les mêmes proportions que les autres PF volatils.

V.2. Estimation en cas de fusion du coeur

En appliquant aux différentes familles de produits radioactifs les taux d'émission hors du combustible figurant dans le tableau I et en supposant que pour toutes les familles (à l'exception des gaz rares) le confinement apporte une réduction d'un facteur 10 des quantités émises à l'extérieur, les contributions sont présentées dans le tableau II pour 2 temps de refroidissement : 1h et 2j. Les iodes apparaissent toujours dominants pour le panache, le dépôt et la dose thyroïde. Pour les autres organes, les césiums et strontiums contribuent de façon majoritaire.

V.3. Estimation d'après les études d'accidents graves

- Le WASH 1400 (appendice VI) a chiffré les contributions, aux effets rapides et retardés sur la santé, des 54 isotopes retenus.

Dans la première catégorie, pour la dose panache, les principales contributions viennent des iodes, des tellures et des gaz rares ; pour la dose dépôt (court terme), on retrouve les iodes et tellures et quelques isotopes tels que Sr 91, Ru 103, Ba 140 et La 140 ; pour la dose par inhalation aux différents organes, également les iodes et les tellures (surtout Te 132) et un assez grand nombre d'isotopes tels que Sr 89 et 90, Y 91, Ru 103 et 106, Cs 134, Ba 140 et La 140.

Pour les effets retardés sur la santé, en ce qui concerne la dose dépôt, la contribution principale vient des Cs 134 et 137 et plus faiblement des Ru 103 et 106 ; pour l'inhalation, les isotopes dominants sont par ordre décroissant : Te 132, Cs 134, Cs 137, Ba 140, les iodes (sauf le 134), le Sr 89.

- L'étude britannique sur Sizewell (rapport NRPB-M100) a chiffré les contributions des différents isotopes pour plusieurs termes-sources et pour la dose à la moelle et la dose effective.

En prenant à titre d'exemple un terme-source sévère (UK2 : 90% de gaz rares, 70% d'iode, 40% de césium, 35% de tellure, 5% de strontium..) on trouve les résultats suivants :

- pour la dose à la moelle à 5 km : les 5 isotopes de l'iode et Te 132 contribuent ensemble pour environ 85%,
- pour la dose effective à 100km : Cs 134, Cs 137, Ru 106 et I 131 contribuent chacun pour environ 20%.

Si l'on prend un terme source plus "réaliste" (UK7 : 80% de gaz rares, 1,4% d'iode, 0,2% de césium, 0,04% de tellure, 0,03% de strontium...), les résultats sont très différents :

- pour la dose moelle à 5km : les gaz rares (surtout Kr 88) contribuent pour plus de 75%,
- pour la dose effective à 100km : I131 contribue pour plus de 50%, les gaz rares pour environ 30%.

VI - CONCLUSION

Les séquences accidentelles possibles sur un REP peuvent être tellement différentes, en particulier par leur cinétique et par les quantités relâchées des différentes familles de produits radioactifs, qu'il est très difficile de tirer des conclusions générales sur les contributions de ces familles aux conséquences radiologiques potentielles. De plus les conséquences radiologiques peuvent être exprimées de différentes façons (modes d'irradiation, organes concernés) et le facteur temps joue un rôle prépondérant.

La meilleure façon de juger a priori de l'importance relative des produits radioactifs semble être, indépendamment de tout scénario physique, de comparer (par élément chimique ou par famille) les produits : activité cœur x taux d'émission hors du combustible x taux d'émission hors du confinement x facteur de conversion de dose. Evidemment ce sont les deux taux d'émission qui posent le plus de problèmes, mais en prenant des valeurs généralement admises (au moins en relatif) il apparaît que les iodes contribuent de façon majoritaire aux doses par irradiation externe et à la dose thyroïde. Pour les doses aux autres organes la famille du strontium-baryum apporte la contribution la plus forte, mais les césiums, tellures, ruthéniums ou même les actinides peuvent contribuer, selon les organes, de façon significative.

Cette façon de comparer les importances relatives devrait permettre de juger des paramètres les plus importants et d'orienter les efforts à poursuivre pour améliorer les connaissances sur l'émission et le comportement (dans l'installation et hors installation) des produits radioactifs.

TABLEAU I
PRODUITS DE FISSION (PAR ELEMENT) ET ACTINIDES PRESENTS DANS LE
COEUR D'UN REP de 900 MWe (t_r = 30 h)

Classe d'émission (1)	Elément	Masse (kg) (2)			Activité (Ci) (2)	Fraction du coeur pouvant être émise en cas d'échauffement important (1)
		stable	instable	total		
1	Krypton	16,7	1,3	18	$2,1 \cdot 10^6$	1
	Xénon	255,6	0,9	256,5	$2,1 \cdot 10^8$	
Total				274,5		
2	Iode	2,0	9,1	11,1	$2,6 \cdot 10^8$	1
	Brome	1,1	0,001	1,1	$1,3 \cdot 10^5$	
Total				12,2		
3	Césium	54,8	80,6	135,5	$1,6 \cdot 10^7$	1
	Rubidium	4,8	12,3	17,1	$5,5 \cdot 10^5$	
Total				152,6		
4	Tellure	20,8	0,6	21,4	$1,1 \cdot 10^8$	0,9
	Antimoine	0,4	0,4	0,8	$7,0 \cdot 10^6$	
	Argent	3,4	0,06	3,5	$1,0 \cdot 10^7$	
	Etain	1,3	1,0	2,3	$1,2 \cdot 10^6$	
Total			28,0			
5	Strontium	17,2	29,5	46,7	$1,4 \cdot 10^8$	0,1
	Baryum	67,9	1,8	68,8	$1,4 \cdot 10^8$	
Total			115,5			
6	Zirconium	133,1	41,6	174,7	$1,8 \cdot 10^8$	0,03
	Niobium		3,2	3,2	$2,4 \cdot 10^8$	
Total			177,9			
7	Ruthénium	104	11,9	115,9	$1,5 \cdot 10^8$	0,02
	Rhodium	21,5	0,6	22,1	$1,9 \cdot 10^8$	
	Molybdène	152,8	0,24	153	$1,2 \cdot 10^8$	
	Tecnetium	8	38,4	38,4	$1,1 \cdot 10^8$	
Total			329,4			

(1) Synthèse du NUREG 0772 et résultats expérimentaux d'Albrecht / 3 /
(2) Rapport SERMA 469 , rappel IC1 = $3,7 \cdot 10^{10}$ Bq

TABLEAU I (suite)

Classe d'émission	Elément	Masse (kg)			Activité (Ci)	Fraction du coeur pouvant être émise en cas d'échauffement important
		stable	instable	total		
8	Arsenic	ε	ε	ε	$1,3 \cdot 10^5$	0,02
	Indium	ε	0,01	0,01	$4,7 \cdot 10^5$	
	Cadmium	3,4	ε	3,4	$4,3 \cdot 10^5$	
	Palladium	41,8	10	51,8	$7,0 \cdot 10^6$	
	Total			55,2		
9	Yttrium	19,9	4,1	24	$1,6 \cdot 10^8$	0,0002
	Lanthane	59,7	0,25	60	$1,4 \cdot 10^8$	
	Cérium	57	84	141	$2,8 \cdot 10^8$	
	Praséodyme	51	1,8	52,8	$2,1 \cdot 10^8$	
	Néodyme	134,6	34,6	169,2	$4,8 \cdot 10^7$	
	Prometheum	ε	12	12	$6,2 \cdot 10^7$	
	Samarium	27	4,2	31,1	$1,6 \cdot 10^8$	
	Europium	4,5	1,9	6,4	$7,7 \cdot 10^6$	
	Gadolinium	2,5	ε	2,5	$1,2 \cdot 10^5$	
Total			499,1			
10	Neptunium	-	7	7	$1,5 \cdot 10^9$ +	0,0002
	Plutonium	-	570	570	$6,4 \cdot 10^6$ *	
	Americium	-	1,8	1,8	$4,1 \cdot 10^3$ +	
	Curium	-	0,5	0,5	$9,8 \cdot 10^5$ +	
	Total			579,3		

+ Ci (α)

* $1,3 \cdot 10^5$ Ci (α) + $6,3 \cdot 10^6$ Ci (β)

Tableau II

Contribution (%) des familles de produits radioactifs en cas
de fusion du coeur pour 2 temps de refroidissement (1h et 2j)
et pour différents modes d'exposition
(Calcul par programme FICAT - note SAER à paraître)

FAMILLES	IRRADIATION EXTERNE				IRRADIATION INTERNE - INHALATION							
	ORGANISME ENTIER				THYROÏDE		MOELLE		POUMON		OS	
	PANACHE		DEPOT		a/b		a/b		a/b		a/b	
	a/b	a/b	a/b	a/b								
Gaz rares	48,1	25,7	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Iodes	35,4	60,8	69,4	81,0	82,3	82,9	3,0	1,2	7,9	2,8	1,7	0,6
Césiums	8,1	4,3	14,6	6,5	0,3	0,5	27,7	29,4	4,0	4,0	12,8	13,3
Tellures	7,0	5,7	13,1	8,3	17,4	16,6	20,1	18,5	12,9	11,1	20,1	19,4
Strontiums	1	0,8	1,9	1,1	0	0	42,7	44,4	51	55,8	42,6	43,5
Zirconiums	0,3	1,7	0,7	2,4	0	0	3,5	3,6	5,8	6	9,9	10
Reste (1)	0,1	0,4	0,3	0,7	0	0	3	2,9	18,4	20,3	12,9	13,2

a/b : valeur à 1h/valeur à 2j

(1) : surtout Ru-Rh pour le poumon
: surtout actinides pour l'os

A titre indicatif, pour un temps de refroidissement d'une heure les rapports des doses inhalées, normalisées par rapport à celle à la moëlle, sont de 90, 8 et 2 pour respectivement la thyroïde, le poumon et l'os. Pour un temps de refroidissement de 2j ces rapports sont respectivement de 60, 8 et 2.

DESTINATAIRES

DIFFUSION CEA

M. le Haut Commissaire

DSE

DDS

IPSN

IPSN/D.SN

IPSN/D.SN : M. CANDES

IPSN/D.SN : M. PELCE

IPSN/D.SN : M. SCHMITT

DAS

LEFH

SASR

SASCEL

SAF

SAER

SGNR

SAREP

BRTSN

SASICC

SASLU

SASLU/VALRHO

SASLU/SPI

SEC

SESECT

SAED/FAR

DERS Cadarache

SES Cadarache

SERE Cadarache

SIES Cadarache

SESRU Cadarache

SRSC Valduc

SEAREL

IPSN/D.Pr/FaR

DPS/FaR

DPT/FaR

UDIN/VALRHO

DEDR Saclay

DRNR Cadarache

DRE Cadarache

DER Cadarache

DEMT Saclay

DMECN/DIR Cadarache

DMECN Saclay

DTCE Grenoble

DSMN/FaR

Service Documentation Saclay

DIFFUSION HORS CEA

Secrétariat Général du Comité Interministériel de la Sécurité Nucléaire : M. AUGUSTIN

Service Central de Sûreté des Installations Nucléaires : M. de TORQUAT (+ 3 ex.)

Service Central de Sûreté des Installations Nucléaires - FAR

Direction Générale de l'Energie et des Matières Premières : M. FRIGOLA

Conseil Général des Mines : M. MEO

FRAMATOME : M. le Directeur Général

NOVATOME : M. le Directeur Général

TECHNICATOME : M. le Directeur Général

TECHNICATOME : Service Documentation

EDF / Etudes et Recherches

EDF / SEPTEN (2 ex.)

EDF / SPT

M. SCHNURER - Bundes Ministerium des Innern - BONN (RFA)

M. KREWER - Bundes Ministerium für Forschung und Technologie - BONN (RFA)

M. BIRKHOFFER - Technische Universität München - GARCHING (RFA)

M. KELLERMAN - Gesellschaft für Reaktorsicherheit - KOLN (RFA)

M. LEVEN - Gesellschaft für Reaktorsicherheit - KOLN (RFA)

M. LAFLEUR - U.S.N.R.C. - WASHINGTON (E.U.)

M. MINOGUE - U.S.N.R.C. - WASHINGTON (E.U.)

M. KINCHIN - U.K.A.E.A. - Safety and Reliability Directorate - RISLEY (G.B.)

M. HANNAFORD - Nuclear Installations Inspectorate - LIVERPOOL (G.B.)

M. ALONSO - Catedra de Tecnologia Nuclear - MADRID (ESPAGNE)

M. PERELLO - Consejo de Seguridad Nuclear - MADRID (ESPAGNE)

M. C. BORREGO - Département de l'Environnement - Université d'AVEIRO (PORTUGAL)

M. CARLBOM - Department of Safety and Technical Services - NYKOPING (SUEDE)

M. NASCHI - Direttore Centrale della Sicurezza Nucleare e della Protezione Sanitaria
ROMA (ITALIE)

M. TANIGUCHI - MITI (JAPON)

M. ISHIZUKA - Science & Technology Agency - Nuclear Safety Bureau (JAPON)

M. TAMURA - Science & Technology Agency - Nuclear Safety Bureau (JAPON)

M. KATSURAGI - JAERI - Center of Safety Research (JAPON)

M. HIRATA - JAERI - Center of Safety Research (JAPON)

COPIE (SANS P.J.)

M. CHAVARDES (Attaché près de l'Ambassade de France aux Etats-Unis)

M. FELTEN (Attaché près de l'Ambassade de France au Japon)

M. WUSTNER (Attaché près de l'Ambassade de France en RFA)