

CEA 2322 - BOUZIGUES Henry, RENEAUD Jean-Marie

RECHERCHE DE DEPOTS DE SELS DE PLUTONIUM DANS LES BATTERIES D'EXTRACTION DU PLUTONIUM DE L'USINE DE MARCOULE (1963)

Sommaire.- Ce rapport décrit une méthode et un montage spécial permettant de détacher les accumulations de sels de plutonium insolubles dans les chaînes d'extraction d'une usine de traitement de combustible irradié.

Le procédé retenu permet de repérer, dans des batteries d'extraction ou dans l'appareillage de génie chimique fortement actif, des masses de plutonium de quelques grammes.

Après quatre années de fonctionnement, il n'a pas été possible de déceler des quantités pondérables de plutonium en aucun endroit de la chaîne d'extraction.

Ces résultats ont été confirmés par les examens visuels effectués à l'aide d'un endoscope conçu spécialement pour cet usage.

CEA 2322 - BOUZIGUES Henry, RENEAUD Jean-Marie

SEARCH FOR PLUTONIUM SALT DEPOSITS IN THE PLUTONIUM EXTRACTION BATTERIES OF THE MARCOULE PLANT (1963)

Summary.- This report describes a method and a special apparatus making it possible to detach the insoluble plutonium salt deposits in the extraction chain of an irradiated fuel treatment plant.

The process chosen allows the detection, in the extraction batteries or in the highly active chemical engineering equipment, of plutonium quantities of a few grams.

After four years operation it has been impossible to detect measurable quantities of plutonium in any part of the extraction chain.

The results have been confirmed by visual examinations carried out with a specially constructed endoscope.

**PREMIER MINISTRE
COMMISSARIAT A
L'ÉNERGIE ATOMIQUE**

**RECHERCHE
DE DEPOTS DE SELS DE PLUTONIUM
DANS LES BATTERIES D'EXTRACTION
DU PLUTONIUM DE L'USINE DE MARCOULE**

par

H. BOUZIGUES et J. M. RENAUD

Rapport C.E.A. n° 2322

**CENTRE DE PRODUCTION
DE PLUTONIUM DE MARCOULE**

CENTRE DE MARCOULE

**SERVICE DE PROTECTION CONTRE LES RADIATIONS
Section Radioprotection des Traitements Chimiques**

**SERVICE D'EXTRACTION DU PLUTONIUM
Section Dissolution - Extraction**

**RECHERCHE DE DEPOTS DE SELS DE PLUTONIUM
DANS LES BATTERIES D'EXTRACTION DU PLUTONIUM
DE L'USINE DE MARCOULE**

par

H. BOUZIGUES et J.M. RENEAUD

TABLE DES MATIERES

1°. LE PROBLEME

2°. CHOIX DU DETECTEUR

- a) Idées directrices
- b) Principe retenu pour la détection
- c) Caractéristiques générales de l'ensemble de comptage
 - I La tête de détection
 - II Le chariot
 - III Le poste de commande et de comptage

3°. ETALONNAGE DE L'APPAREIL

- a) Réponses au rayonnement γ
- b) Réponses au rayonnement neutronique
 - I Réponses au flux émis par une source étalon de radium-béryllium
 - II Essais avec une solution de nitrate de plutonium
 - III Essais avec des sources constituées par des dépôts solides d'oxalate de plutonium

4°. MESURES SOUS LES BATTERIES D'EXTRACTION

5°. APPAREILLAGE OPTIQUE ET OBSERVATIONS DANS LES DECANTEURS

- a) Description de l'appareil
- b) Résultat de l'observation

6°. CONCLUSIONS

BIBLIOGRAPHIE

RECHERCHE DE DEPOTS DE SELS DE PLUTONIUM DANS LES BATTERIES D'EXTRACTION DU PLUTONIUM DE L'USINE DE MARCOULE

1°. LE PROBLEME

Dans les installations industrielles d'extraction chimique du plutonium, le repérage des zones d'accumulation de la matière fissile, qui transite en quantité élevée dans les chaînes de retraitement de combustible, est une nécessité impérieuse en raison des risques de rassemblement de conditions critiques qu'elles peuvent entraîner. En effet, il est bien connu que l'examen des bilans de fabrication, établis à partir de résultats analytiques, fait apparaître très souvent des écarts significatifs entre la quantité de plutonium présente dans le combustible au début du traitement et le poids des lingots de métal sortant de l'usine. Ces écarts atteignent parfois des valeurs telles qu'on s'aperçoit, après quelques années d'exploitations, que les installations peuvent avoir accumulé des quantités de matériaux fissiles supérieures aux masses critiques. Il est très important pour les responsables d'exploitation de connaître le destin de ce plutonium qui représente un risque potentiel élevé et susceptible d'échapper à tout contrôle.

Ces pertes, ou les accumulations qui peuvent en être le corollaire, ont plusieurs causes. Dans les réactions chimiques par voie humide sur lesquelles repose la plus grande partie du procédé d'extraction de l'usine de MARCOULE, on rencontre plusieurs sels de plutonium insolubles. Ils peuvent être formés, soit par hydrolyse de composés en milieu très faiblement acide, soit par oxydation avant traitement du combustible conservé, pendant des périodes prolongées, sans précaution dans une atmosphère oxygénée : une faible partie du plutonium présent se transforme en un dioxyde insoluble. Il semble, toutefois, que compte tenu des conditions d'exploitation de l'usine, le premier processus soit le plus probable. Une baisse locale d'acidité peut entraîner une hydrolyse brutale des composés de plutonium en solution et la formation, au fond des cuves, d'un précipité pratiquement insolubilisable même après une réacidification énergique du milieu [1].

C'est dans le but de vérifier si des dépôts de ce genre ne s'étaient pas constitués durant les quatre années de marche de l'atelier d'extraction par solvant, que nous avons entrepris cette étude. Cette tâche nous avait été confiée dans le cadre du programme de travaux d'entretien et de vérification, établi pendant la période d'arrêt prolongé de l'usine, en 1962 : il s'agissait d'explorer les fonds des

batteries du premier cycle d'extraction, afin d'y repérer les dépôts de sel de plutonium qui auraient pu s'y accumuler. Cette exploration reposait sur des examens visuels au moyen d'un endoscope spécialement étudié, et sur des mesures neutroniques.

Les difficultés de l'entreprise étaient nombreuses. Une des plus sérieuses résultait de la présence d'un rayonnement gamma intense, émis par une quantité élevée de produits de fission contaminant encore les parois des batteries vidées de leur contenu. Des mesures, exécutées à l'aide de détecteurs chimiques au sulfate ferreux [2], ont révélé des débits de dose atteignant jusqu'à 2.10^5 rads/heure au niveau de l'extraction I en charge. Le flux gamma, sous la partie inférieure de la batterie II, la plus intéressante pour ce que nous recherchions, était plus faible, mais, même après vidange et décontamination de l'appareillage, il restait de l'ordre de plusieurs centaines de rads par heure.

L'émission neutronique des sels de plutonium nous a paru le seul rayonnement utilisable pour la détection éventuelle des dépôts. Le plutonium, en solution ou à l'état de dépôt salin, constitue une source de neutrons de faible intensité. Ces neutrons sont produits par les fissions spontanées du plutonium (surtout du ^{240}Pu) et principalement par réactions (α, n) sur les éléments légers. Toutefois, on peut penser, compte tenu de ce que l'on sait de cette émission, que la quantité de neutrons due aux réactions (α, n) sur l'oxygène constitue le terme principal de l'ensemble des particules émises. Il représente environ une activité neutronique quatre fois plus intense que celle dont l'origine doit être recherchée dans les fissions spontanées, tout au moins en considérant la composition isotopique des lingots fabriqués à MARCOULE. Le spectre d'émission dominant nous est inconnu : il nous a paru très différent et riche en particules d'énergie beaucoup plus faible que celui des sources de radium-béryllium utilisées habituellement pour l'étalonnage de détecteurs neutroniques.

Comme les batteries avaient été vidées et décontaminées au préalable, à l'exclusion de la batterie I (pots de L à 7 de l'extraction I), on pouvait s'attendre à ce que les neutrons émis soient, en majorité, des neutrons situés dans les bandes rapides et intermédiaires et que la géométrie source-détecteur ne soit pas simple.

2°. CHOIX DU DETECTEUR

a) Idées directrices

Le détecteur utilisé devait satisfaire à plusieurs conditions : être insensible aux rayonnements gamma d'intensité élevée mais, par contre, aussi sensible que possible aux neutrons émis à partir des réactions (α, n) de façon à permettre la détection de source d'intensité faible; enfin être anisotrope, c'est-à-dire peu influencé par des sources voisines, de manière à localiser les différences significatives dans la distribution des flux sur le fond des batteries.

Après quelques essais infructueux, durant lesquels furent utilisés des détecteurs à protons de recul, puis des chambres de fission entourées d'un modérateur, nous avons pensé que seul un long compteur à trifluorure de bore, convenablement blindé, était susceptible de satisfaire aux conditions de nos recherches. Les chambres à fission, types CFU₁ et CFU₂, peuvent donner des réponses acceptables en

présence de rayonnements gamma, à condition que les débits de dose de ceux-ci ne dépassent pas 10^4 rads/heure. Toutefois, notre expérience de ce genre de détecteur, par ailleurs largement utilisé pour le contrôle de l'activité neutronique des décanteurs des extractions I et II, nous a montré que sa sensibilité n'était pas suffisante pour permettre l'identification de quantités de plutonium, sous forme d'oxyde, de l'ordre de quelques centaines de grammes étalés sur des surfaces de plusieurs mètres carrés.

Il importe, toutefois, d'indiquer qu'une chambre CFU_1 , entourée d'un modérateur de paraffine de 5 cm d'épaisseur, permet des mesures correctes à une distance de 1 mètre d'une source ponctuelle de PuF_4 représentant 70 g de plutonium élément. Des mesures analogues, avec un sel oxygéné de plutonium renfermant la même masse de cet élément, et exécutées dans les mêmes conditions de géométrie source-détecteur, ne donnaient pas de résultats significatifs, du fait du rendement beaucoup plus faible de la réaction (α, n) sur l'oxygène.

A titre indicatif, le tableau suivant (cf. page 4) donne quelques rendements de réactions (α, n) tirés de la littérature, obtenus avec des noyaux légers.

La faible émission neutronique du dioxyde s'explique par l'abondance de l'isotope 18 de l'oxygène (0,204 pour cent), seul responsable de la réaction $^{18}O(\alpha, n)^{21}Na$ dans la molécule. Ces chiffres ne concernent que des produits purs, dont le taux d'émission peut varier avec la teneur en impuretés des sels, leur compacité et la géométrie source-détecteur [3]. Etant donné le taux d'émission des sels oxygénés du plutonium, nous avons dû renoncer à l'utilisation de la chambre de fission pour effectuer nos mesures de repérage, malgré la sélectivité de ses réponses en présence d'importants flux de rayons gamma.

Eléments	Nombre de n émis par 10^6 α reçus
^7Li	2,6
^9Be	80
^{10}B	13
^{11}B	26
^{13}C	0,1
^{18}O	29
^{19}F	12
^{23}Na	1,5
^{25}Mg	6
^{26}Mg	6
^{27}Al	0,74
^{29}Si	1,5
^{30}Si	1,5
^{37}Cl	0,45
^{40}Ar	0,38
Sels de plutonium	Neutrons émis par seconde
Tétrafluorure (PuF_4)	($1,1 \cdot 10^4$ /g de sel
	($1,47 \cdot 10^4$ /g d'élément
	(69,1 /g de sel
Oxalate	(120 /g d'élément
	(37,9 /g de sel
Dioxyde (Pu O_2)	(43 /g d'élément

b) Principe retenu pour la détection

La prospection devait être effectuée dans un plan parallèle au fond des batteries d'extraction qui se présentent, en gros, sous forme de parallélépipèdes rectangles. Il était donc indispensable de disposer d'un détecteur se déplaçant dans ce plan et capable de se mouvoir suivant deux axes de coordonnées rectangulaires $O X$, $O Y$, à une distance constante d'une source plane de neutrons d'activité spécifique variable et faible.

L'avantage du compteur à trifluorure de bore enrichi, vingt fois plus sensible aux neutrons lents que la chambre de fission, est indiscutable dans ce genre de détection ; mais il fallait résoudre le problème de sa protection contre le rayonnement gamma.

Afin d'augmenter la sélectivité du long compteur, nous avons pensé agir de deux manières : d'une part, blinder le compteur avec du plomb, d'autre part, utiliser une électronique capable de discriminer efficacement les impulsions α des signaux provenant du rayonnement gamma émis à des débits de dose supérieurs à plusieurs centaines de rads/heure.

Le blindage retenu fut un écran de plomb de 50 mm d'épaisseur, n'altérant pas sensiblement le rayonnement neutronique, mais capable d'offrir une protection indispensable à la "vie" du compteur. Derrière ce blindage, on a disposé le détecteur entouré d'une certaine épaisseur de modérateur correspondant, eu égard au spectre de neutrons à ralentir, au maximum de densité de neutrons thermalisés (Cf. Fig. 1). Cette épaisseur fut déterminée à partir de résultats expérimentaux. L'ensemble fut gainé dans une enveloppe constituée par une feuille de cadmium et disposé au sein d'une protection de paraffine présentant une ouverture découvrant, dans une direction privilégiée, la partie sensible du détecteur. Un tel dispositif présente le maximum de sensibilité aux sources situées dans l'angle solide vu par la partie découverte du détecteur. Le demi-angle d'ouverture de la fenêtre a été déterminé de façon à voir exactement la projection d'un pot mélangeur-décanteur, après centrage convenable de la source à la cote séparant le fond de la batterie du plan de mesure.

A cet ensemble, il convenait d'associer une électronique capable de recevoir des signaux, de les mettre en forme, de les discriminer, enfin de les compter assez loin du lieu de leur production. Les conditions de la mesure étaient telles que l'on était dans l'obligation de disposer d'un câble d'alimentation et de deux câbles coaxiaux de quarante mètres de long. D'autre part, étant donné l'importance du flux gamma existant sous les batteries, il n'était pas question d'utiliser un préamplificateur type BFP₁ et l'amplificateur d'impulsions correspondant. Nous avons pensé résoudre ce problème en utilisant un amplificateur à transistors du type AIT₃, mis au point par MM. COULY et FEYT [5]. Cette solution nous a été conseillée par M. FITOUSSI, Ingénieur à la Section de Protection contre les Radiations de Saclay, que nous tenons à remercier ici. Ce montage nous a séduit par son très faible encombrement, qui permet de l'incorporer au sein de la protection du compteur et par ses caractéristiques. Convenablement couplé avec un avant de mise en forme et de discrimination de tension des impulsions de sortie, l'ensemble permet d'éliminer l'influence du rayonnement gamma pour les débits de dose voisins de 300 rads/heure. Cette sélectivité d'une part, et la protection de plomb isolant à la fois

l'amplificateur et le long compteur d'autre part, devaient permettre au détecteur un intervalle d'utilisation s'étendant à des flux de rayons gamma dépassant le millier de rads/heure. Le montage de MM. COULY et FEYT a cependant dû être modifié, pour tenir compte de l'affaiblissement du signal que devait inévitablement entraîner la longueur du câble coaxial de liaison.

c) Caractéristiques générales de l'ensemble de comptage

Cet ensemble a été réalisé et adapté à nos besoins, par le Groupe de Contrôle et Régulation du Service d'Extraction du Plutonium du Centre de Marcoule.

I La tête de détection (Cf. Fig. 1)

Elle comprend :

- le compteur à BF_3 [6]
 - . longueur utile : 15 cm
 - . diamètre de section utile : 1,8 cm
 - . pression : 20 cm de Hg
 - . gaz de remplissage : trifluorure de bore enrichi à 95 pour cent en ^{10}B
 - . rendement des réponses : 1 impulsion pour 1 neutron/cm²
 - . hauteur d'impulsion : 3 - 5 mV (THT = 1500 V)
- l'amplificateur à transistors
 - . gain : 1 000
 - . bande passante : 1,5 MHz
 - . impédance d'entrée : 10^3 ohms
 - . impédance de sortie : 75 ohms
 - . impulsion d'entrée : négative de 3 à 5 mV
 - . impulsion de sortie : négative 6,5 V
 - . consommation : 12 mA

- le ralentisseur de paraffine, contenu dans un cylindre de cadmium de 2 mm d'épaisseur; il entoure entièrement le long compteur de manière concentrique et offre 40 mm d'épaisseur de modérateur sur une section droite;

- la protection de plomb constituée par un cylindre creux de 50 mm d'épaisseur, concentrique au long compteur, avec une cavité aménagée à une extrémité pour recevoir le préamplificateur et des ouvertures chicanées pour le passage des câbles;

- la protection neutronique également concentrique au cylindre de plomb, réalisée par un cylindre de tôle dans lequel a été coulée de la paraffine formant un manchon de 100 mm d'épaisseur, dans lequel une fenêtre de 290 mm de largeur a été aménagée, découvrant la longueur utile de compteur sous un angle d'ouverture de 56°.

II Le Chariot (Cf. Fig. 2)

L'ensemble est posé sur un berceau monté sur roues (déplacement direction Est-Ouest). Ce chariot est installé sur les deux longerons transversaux d'une nacelle télécommandée mobile sur des rails parallèles aux axes des batteries (déplacement direction Nord-Sud).

On peut faire varier la cote du plan de mesure en réglant la hauteur de la

tête de détection sur un berceau.

III Le poste de commande et de comptage

Ce poste est situé dans une zone normale de travail. La baie de comptage comprend :

- . une alimentation ALS 400
- . un tiroir d'entrée TU_2
- . un tiroir double décade $T_2 D_1$
- . un tiroir numérateur TND_1
- . un tiroir THT_4 de 1500 V, ajustable de 1200 à 1700 V.

Etant donné les faibles taux de comptage à mesurer, nous n'avons pas envisagé l'utilisation d'un tiroir intégrateur.

3°. ETALONNAGE DE L'APPAREIL

a) Réponses au rayonnement γ

Le détecteur a été exposé au flux émis par une source ponctuelle de radiocobalt-60 de 10 Ci, disposée à la cote 360 mm sur la verticale passant par le centre de gravité du compteur et normale à son grand axe. Le débit de dose reçu au niveau du compteur était de 8 rads/heure : il simulait une exposition de la tête de détection à un rayonnement d'intensité 1200 rads/heure, émis par une source de radiozirconium-95.

La réponse du compteur fut étudiée au moyen de plusieurs comptages d'une durée de 20 minutes. Le bruit de fond ne dépassa jamais 0,05 coups/minute. Etant donné que la valeur vraie du débit de dose délivrée par le rayonnement gamma sous les batteries ne dépasse pas quelques centaines de rads/heure, il en résulte que l'influence du rayonnement gamma sur le taux de comptage neutronique peut être négligée.

b) Réponses au rayonnement neutronique

I Réponses au flux émis par une source étalon de radium-béryllium

La source peut être considérée comme ponctuelle ; elle émet $3,92.10^5$ n/seconde d'énergie moyenne voisine de 4 MeV. Elle était placée à 650 mm du cylindre ralentisseur et sur la verticale passant par le centre de gravité de celui-ci. Le flux, frappant directement la partie sensible découverte par la fenêtre, était de $7,4$ n/cm² seconde. Plusieurs essais ont été effectués en obturant chaque fois la fenêtre par un bouchon de paraffine, afin de déterminer le bruit de fond du compteur augmenté des signaux correspondants aux neutrons diffusés par les murs de la salle. Les comptages furent effectués sur trois minutes et la moyenne des résultats obtenus a donné les chiffres suivants :

- Fenêtre ouverte	2511	coups/3 minutes
- Fenêtre fermée	184	coups/3 minutes
	<hr/>	
- Réponse au flux direct	2327	coups/3 minutes

On a donc : $775,6 \pm 22,6$ coups/minute

La source a été ensuite déplacée dans un plan parallèle au plan du détecteur et à la cote + 650 mm par rapport à celui-ci. On a procédé à des comptages pour 9 positions géométriques inscrites dans un rectangle de 300 mm x 600 mm, centré sur la verticale passant par le centre de gravité du compteur. Sur un intervalle de 3 minutes dans chaque position, les réponses ont été les suivantes :

<u>Positions</u>	<u>X / Y / Z</u> (mm)	<u>Réponses du compteur</u> (coups/3mn)
1	150 / 0 / 650	1 947
2	150 / 300 / 650	782
3	0 / 300 / 650	804
4	150 / 300 / 650	753
5	150 / 0 / 650	1 731
6	150 / 300 / 650	886
7	0 / 300 / 650	785
8	150 / 300 / 650	871
0	0 / 0 / 650	2 327

OZ étant l'axe vertical de déplacement.

Les réponses d'un détecteur de ce genre sont, pour un flux donné, très influencées par l'énergie des neutrons émis. Il n'était donc pas possible d'étalonner l'ensemble de comptage par rapport à la source de radium-béryllium, comme cela peut être réalisé à l'aide d'un montage type HANSON et MacKIBBEN. Par ailleurs, nous l'avons déjà signalé, le taux d'émission des neutrons émis par les sels de plutonium, varie avec la nature et la forme des sources (α, n). Dans ces conditions, il n'a pas été envisagé de déterminer la valeur absolue du rendement de ces réactions, ainsi que l'ont fait plusieurs auteurs avec des méthodes différentes, mais d'étudier les réponses du compteur par rapport à des sels de plutonium en solution et à l'état de dépôt solide, dans des conditions aussi proches que possible de celles de la prospection que nous envisagions.

II Essais avec une solution de nitrate de plutonium

(Les sources ont été mises à notre disposition par la Section de Purification-Métallurgie du plutonium, et leur composition analytique nous a été fournie par le Groupe de Contrôle α de la Section Laboratoires du S. Pu.)

La source était contenue dans un récipient cylindrique en polythène, entouré d'une double enveloppe de vinyle, dont les dimensions étaient 160 mm de diamètre sur 250 mm de hauteur. Sa composition était la suivante :

Masse de plutonium	105,1 g
Masse d'uranium	50,0 g
Masse de fer	54,0 g
Masse de thorium	$18,5 \cdot 10^{-3}$ g
Acidité nitrique	1,55 N
Acidité sulfurique	0,17 N
Activité en produits de fission	30 mCi
Volume	5 l
Densité	1,12 à 21° C

Des mesures, identiques à celles exécutées à l'aide de la source de radium-beryllium, furent effectuées à l'aide de cette solution de plutonium.

En position 0, c'est-à-dire correspondant aux coordonnées 0 / 0 / 650, on obtenait les réponses suivantes :

- Fenêtre ouverte	49 coups/3 minutes
- Fenêtre fermée	2 coups/3 minutes

- Réponse au flux direct — 47 coups/3 minutes

Soit : $15,6 \pm 3,2$ coups/minutes

Pour les différentes positions dans le plan, on a trouvé, en comptant pendant 3 minutes :

<u>Positions</u>	<u>X / Y / Z</u> (mm)	<u>Réponses du compteur</u> (coups/3mn)
1	150 / 0 / 650	27
2	150 / 300 / 650	16,8
3	0 / 300 / 650	18
4	-150 / 300 / 650	24
5	-150 / 0 / 650	25
6	-150 / -300 / 650	18,9
7	0 / -300 / 650	22,8
8	150 / -300 / 650	19,8
0	0 / 0 / 650	46,8

III Essais avec des sources constituées par des dépôts solides d'oxalate de plutonium

Nous disposions de deux précipités, contenant respectivement : 142,6 g (source 1) et 119,8 g (source 2) de plutonium élément.

Ces dépôts étaient contenus dans un godet de centrifugeuse en Hastelloy C, de forme cylindrique, mais à fond grossièrement semi-sphérique et disposés au-dessus du détecteur, dans des conditions géométriques qui, suivant les conventions adoptées antérieurement, peuvent être résumées ainsi :

$$(X / Y / Z) = (0 / 0 / + 650) \text{ mn}$$

Pour un intervalle de comptage de 3 minutes, on a trouvé :
(Cf. page 10)

SOURCES	(1)	(2)
- Fenêtre ouverte	165	103
- Fenêtre fermée	4	4
	<hr/>	<hr/>
- Réponse au flux direct	161	99

Soit : $53,66 \pm 5,98$ coups/minute pour la source (1)

33 $\pm 4,69$ coups/minute pour la source (2)

L'influence d'un flux gamma élevé sur la détection neutronique a été vérifiée par l'expérience que résumet les données suivantes :

<u>Sources</u>	<u>Positions</u> (x/ y/ z) mn	<u>Réponse en coups</u>
^{60}Co (10 Ci)	0/ 0/ 240	1/20 minutes
(1)	0/ 0/ 240	2953/10 minutes
(1) + ^{60}Co	0/ 0/ 240	2953/10 minutes

Compte tenu de la protection de plomb du compteur, l'expérience correspondait à un dépôt solide de sel oxygéné de plutonium renfermant 142,6 g d'élément et émettant des rayons γ de 0,7 MeV avec un débit de dose qui, au niveau de la tête de détection, était de 1800 rads/heure.

Deux autres dépôts d'oxalate, contenant respectivement 89 g et 95,7 g de plutonium élément, furent positionnés au-dessus du détecteur et parfaitement centrés par rapport à celui-ci. L'un des précipités, en outre, fut placé dans une cuve remplie d'eau et son émission neutronique fut mesurée. La source disposée au fond de la cuve était surmontée d'une lame d'eau de 90 mm d'épaisseur, afin de simuler une détection sous une cuve contenant un liquide résiduaire de décontamination.

Les résultats de ces mesures sont rassemblés dans le tableau de la page 11.

Poids de Pu en g	Positions de la source (z / x / y) en mm	Réponses du compteur sur trois minutes
89	213 / 0 / 0	660 ± 36,4
89	993 / 1000 / 0	9 ± 4,2
95,7	213 / 0 / 0	999 ± 44,7
95,7	603 / 0 / 0	78 ± 12,49
95,7	1213 / 0 / 0	24 ± 6,9
95,7	993 / 500 / 0	15 ± 5,47
95,7	993 / 1000 / 0	6 ± 3,46
95,7	993 / 0 / 0	40,8 ± 9
95,7	993 / 0 / 500	18 ± 6
95,7	993 / 0 / 0	42 ± 9,16
89 + 95,7	993 / 0 / 0	60 ± 10,95
142,6	650 / 0 / 0	162 ± 12,7
119,8	650 / 0 / 0	99 ± 14,07
105,1 (solution)	650 / 0 / 0	46,8 ± 96

Le mouvement propre est nul en toutes positions.

Voici, ramenées à une masse de 100 g de plutonium élément, quelles ont été, en fonction de la distance source-détecteur, les réponses du compteur :

Poids de Pu en g dans la source	Positions de la source (z / x / y) en mm	Réponses du compteur ramenées à 100 g d'élément (coups / 3 mn)
89	213 / 0 / 0	741,18 ± 40,87
95,7	213 / 0 / 0	1042,9 ± 46,7
142,6	650 / 0 / 0	113,5 ± 8,9
119,8	650 / 0 / 0	83 ± 8
95,7	993 / 0 / 0	42,6 ± 9
184,5	993 / 0 / 0	32,5 ± 6

L'examen de ces deux tableaux appelle les remarques suivantes :

1) Les réponses du compteur sont nettement affectées par les déplacements de la source sur l'un des axes x ou y. Au-delà de un mètre de la projection du centre de gravité du compteur sur le plan de mobilité de la source, le taux de comptage tombe notablement.

2) Dans les conditions géométriques les plus favorables (213/ 0/0), des oxalates de provenance et de poids divers émettent un taux de rayonnement neutronique qui, pour une même cote et ramené à la même masse de plutonium élément, présente des écarts maximum de moins de 50 pour cent.

3) Sur un intervalle de temps de trois minutes, considéré comme compatible avec la prospection que nous nous proposons d'entreprendre, les possibilités de détection de dépôts salins de plutonium dépendent évidemment de la distance source-compteur. A la cote 213 mm, on pouvait espérer identifier une source de petites dimensions contenant un gramme de plutonium. D'autre part, à la cote de 650 mm, la limite de détection se situait autour de 10 g de plutonium. Enfin, à la cote 1000 mm, la sensibilité du compteur restait encore de l'ordre de 20 g de plutonium.

4°. MESURES SOUS LES BATTERIES D'EXTRACTION (voir schémas 3 et 4)

Ces mesures ont été effectuées en déplaçant le compteur sous les batteries I et II d'extraction par solvant de l'usine, après que celles-ci eussent été vidées de leur contenu et partiellement décontaminées. Le schéma ci-après représente les réponses du détecteur.

Distance en mètres	Extractions Batteries Pots	Taux de comptage en coups/mn		
		Axe des batteries	sous mélangeur	sous décanteur
0		0	0	0
1	II	0	0	0
2		0	0	0
3		0	0	0
4		0	0	0
5		0	0	0
6	I	0	0,3	0
7		0	0	0
8		0	0	0
9		0	0	0
10		0	0	0
11	II	0	0,3	0,3
12		0	0,3	0,3
13		0	0	0
14		0	0,3	0,3
15		0	0,6	0
16	I	0	0,3	0
17		0	0	0
18		0	0	0
		0	0,6	0,3
		0	0,6	0,3

Déplacements du chariot suivant l'axe longitudinal de la chaîne

Position :

Distance 550 mn Distance 400 mn Distance 400 mn

Le mouvement propre est nul en toutes positions.

Trois séries de mesures ont été faites sous les extractions I et II. Le comptage maximal obtenu est donc à l'aplomb du mélangeur L et du mélangeur 5 de l'extraction I.

Un comptage de 0,6 coups/mn correspond d'après nos étalonnages à 2 grammes de Pu sous forme d'oxalate. Toutefois, il convient de faire remarquer qu'en cet endroit le débit de dose est tel que l'influence du flux de rayonnement peut être rendue partiellement responsable des signaux émis par le compteur. Il est cependant permis de penser que les quantités de plutonium restant dans ces batteries ne dépassent pas quelques grammes.

5°. APPAREILLAGE OPTIQUE ET OBSERVATIONS DANS LES DECANTEURS

a) L'appareil construit est schématisé sur le schéma 5. Il consiste en un endoscope à objectif mobile avec trois renvois d'angle ; le grossissement est de l'ordre de 1,5 et le champ angulaire d'environ 50°, permet d'observer sur le fond du décanteur une bande d'environ 80 mm de large. Deux lampes de 45 watts sont descendues et peuvent être déplacées.

L'ensemble est mobile autour de l'axe vertical et permet ainsi d'explorer une couronne autour du mélangeur ; le champ peut être augmenté légèrement par déplacement de l'objectif.

On introduit l'appareil dans le logement d'une turbine de mélangeur et l'observation se fait sur la plaque de plomb de la batterie.

b) Résultats de l'observation

Nous avons choisi d'observer deux décanteurs de l'extraction I : le décanteur 12, où s'était passé un phénomène non expliqué en février 1962, et le décanteur 8, afin d'éviter les débits de dose d'irradiation trop importants des étages d'extraction.

L'observation a eu lieu le 8 août 1962. Nous avons pu apercevoir le fond du déversoir du solvant, l'intérieur de la tuyauterie de sortie ainsi que le cordon de soudure de la boîte, une portion du fond du décanteur, les surfaces extérieures du mélangeur et le bas de la tôle de séparation du compartiment de la phase aqueuse. La surface de l'acier inoxydable nous est apparue en tous points brillante et nette, les cordons de soudure bien dégagés, aucune trace de dépôts ne put être aperçue. Dans le pot 8, une nappe de quelques mm d'acide n'avait pas été vidangée, on voyait par réflexion les sondes conductrices. L'intérieur du mélangeur, visible directement, ne révélait rien d'anormal ; enfin, les soudures des déflecteurs se dessinaient de façon très nette .

6°. CONCLUSIONS

L'ensemble des recherches et observations fait apparaître qu'après quatre années de fonctionnement, les batteries d'extraction n'ont pas accumulé des quantités

importantes de plutonium.

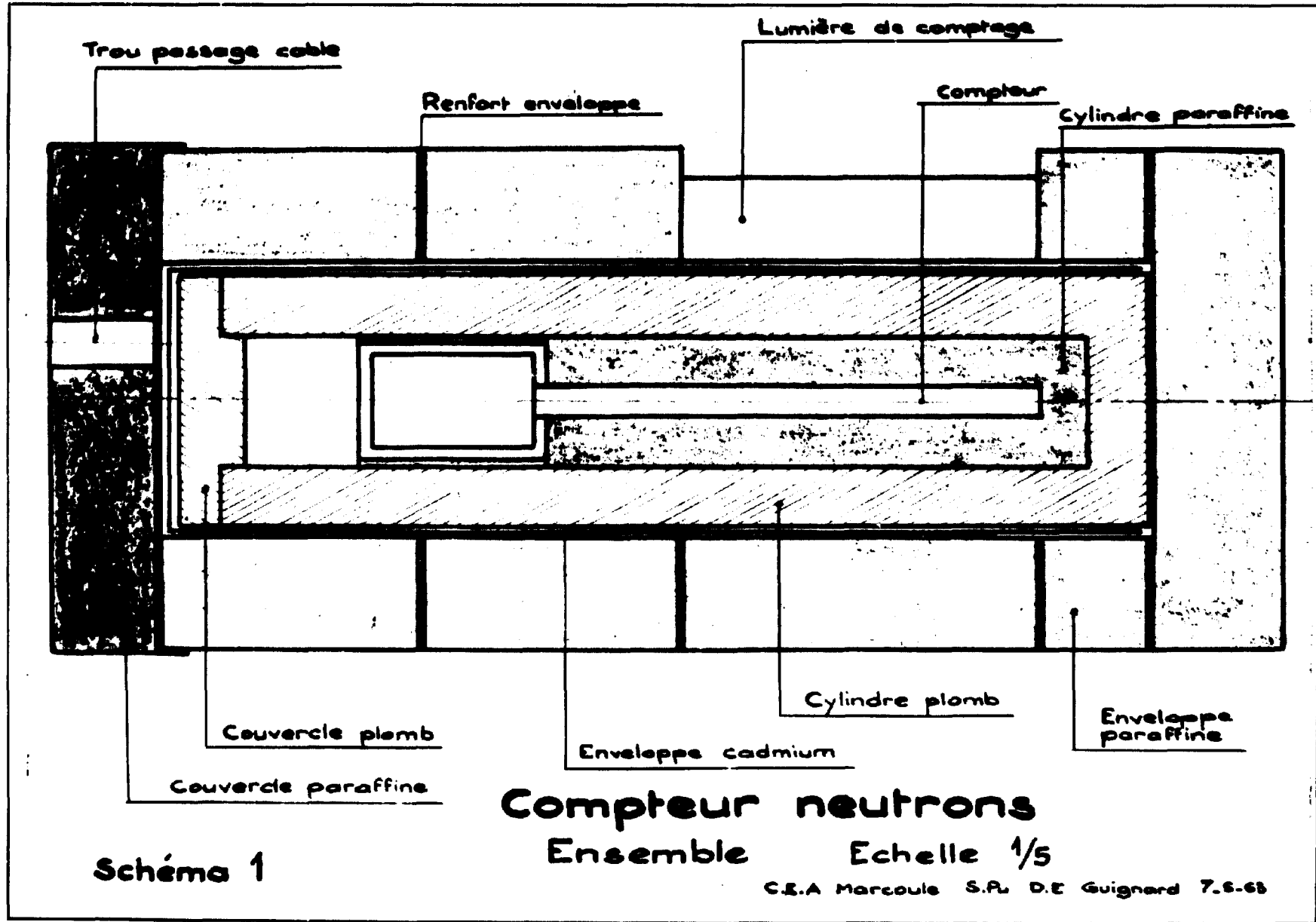
Les mesures optiques sont difficiles et nécessitent préalablement une vidange et une décontamination importante de l'installation.

Les mesures neutroniques sont possibles batteries pleines, il est envisagé de refaire une série de mesures pendant l'exploitation avec le "hold-up" des batteries pour confirmer nos premières mesures. Elles seront complétées par des mesures de flux effectuées parallèlement, afin de déterminer l'influence de celui-ci sur les réponses du détecteur à neutrons, particulièrement dans les régions où l'émission neutronique est faible.

B I B L I O G R A P H I E

- [1] - KATZ, SEABORG
The Chemistry of the actinide Elements.
Methuen Edit. 1957.
- [2] - BOUZIGUES H., SCHEIDHAUER J., BRIAN R., MESSAINGUIRAL L.
Sensibilité accrue du dosimètre à sulfate ferreux de Frick par l'utilisation du réactif à l'orthophenanthroline.
Rapport C.E.A. n° 1668, 1960.
- [3] - MARION S.B., FOWLER S.L.
Fast neutrons physics - Part I. Techniques
Interscience Publishers.
- [4] - ANDERSON E.L.
Neutrons from α emitters.
Preliminary report n° 3, dec. 1948 - Nuclear Science Serie -
- [5] - FEYT J., COULY J.P. (C.E.N. Saclay - S.P.R.)
Amplificateurs d'impulsions à transistors (A.I.T.)
Rapport C.E.A. n° 1932, 1962.
- [6] - Catalogue des appareils constructions électriques.
C.E.N. Saclay.

Manuscrit reçu le 18 juin 1963.



Trou passage cable

Lumière de comptage

Renfort enveloppe

Compteur

Cylindre paraffine

Couvercle plomb

Cylindre plomb

Enveloppe paraffine

Enveloppe cadmium

Couvercle paraffine

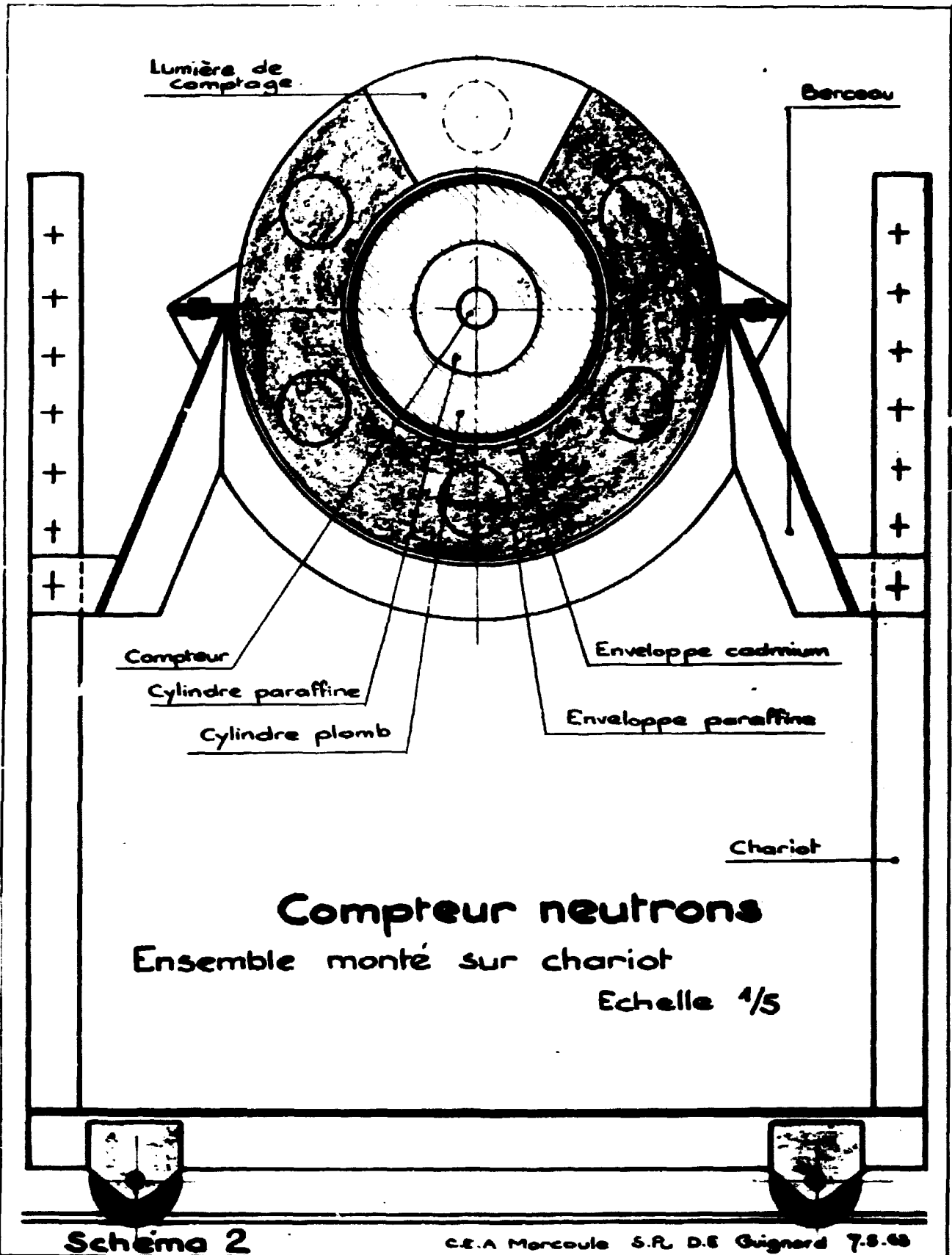
Compteur neutrons

Ensemble

Echelle 1/5

Schéma 1

C.R.A. Marcoule S.P. D.E. Guignard 7.6.68



Compteur neutrons
 Ensemble monté sur chariot
 Echelle 1/5

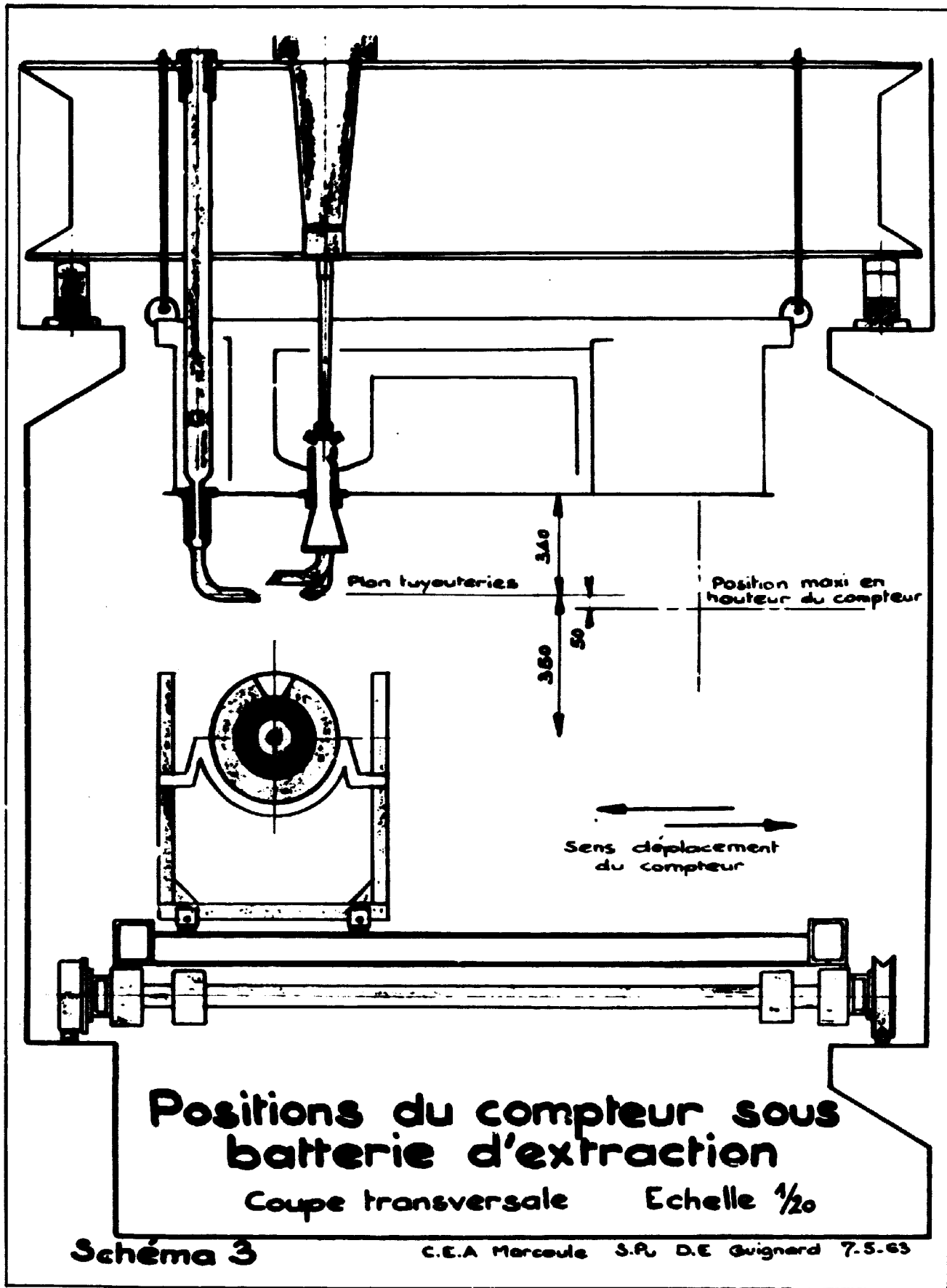
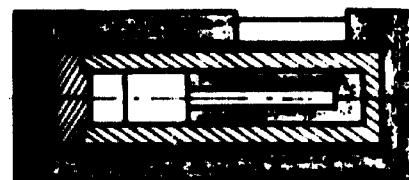
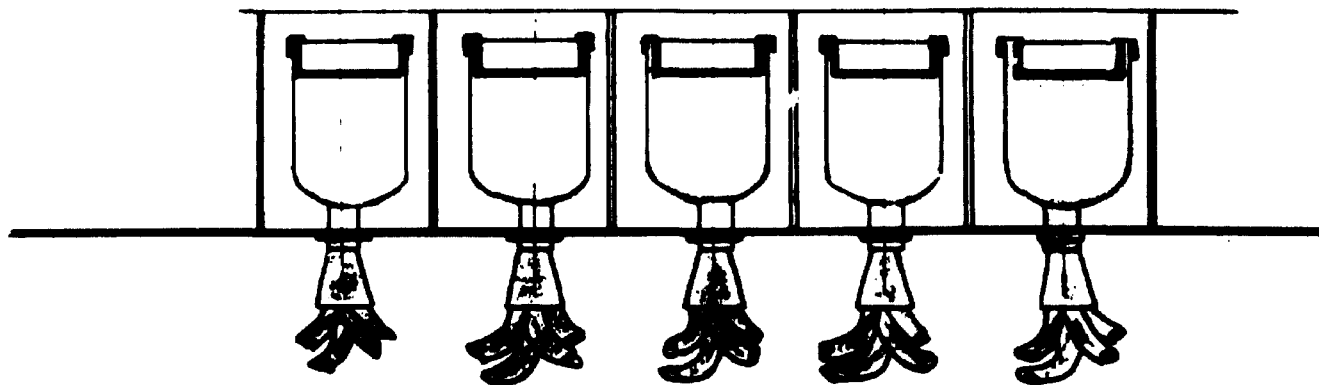

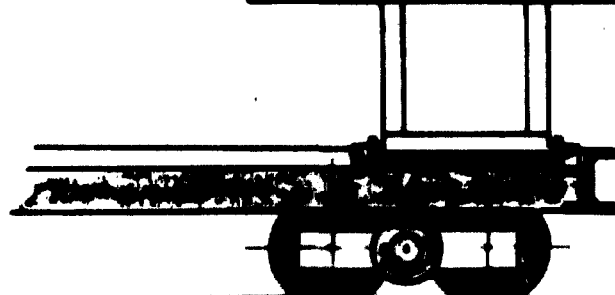


Schéma 3

C.E.A Marceule S.P. D.E Guignard 7-5-63




 Sens déplacement
 du compteur



Position du compteur sous batterie d'extraction

Coupe longitudinale

Echelle 1/20

Schéma 4

C.S.A. Marseilles S.P. D.E. Guignard 7.5.63

FIN