

C.E.A.

C.E.N. SACLAY

SERVICE DE PROTECTION
CONTRE LES RAYONNEMENTS

SOCIETE FRANÇAISE DE RADIOPROTECTION
JOURNEES "PLUTONIUM ET RADIOPROTECTION"
C.E.N. SACLAY, 14-15-16 juin 1983

EVALUATIONS COMPAREES DU PLUTONIUM DISPERSE LORS DES ESSAIS NUCLEAIRES AERIENS
ET DES DECHETS PLUTONIFERES EVACUES, STOCKES
OU EN ATTENTE DE CONDITIONNEMENT DANS LE CYCLE DU COMBUSTIBLE

J.C. ZERBIB - S.P.R./C.E.N. SACLAY

Nous allons tenter d'évaluer la quantité de plutonium contenue dans les rejets contrôlés ou accidentels et dans les déchets conditionnés ou non, résultant des activités industrielles, afin de la comparer à celle dispersée à l'occasion des essais nucléaires aériens.

Cette dernière fraction a fait l'objet de nombreuses évaluations fondées principalement sur des mesures de contamination radioactive de l'environnement. Ces résultats et synthèses ont été publiés dans la littérature scientifique internationale. Il n'en va pas de même pour le plutonium résultant de la première fraction. Cette lacune s'explique principalement par le secret qui entoure des activités industrielles qui consistent principalement à extraire, purifier et ouvrir du plutonium destiné à un usage "militaire".

Le développement industriel du retraitement des combustibles irradiés de la filière à eau ordinaire et des réacteurs à neutrons rapides (fabrication et retraitement du combustible) ne modifiera pas nécessairement cette tendance.

I - LE PLUTONIUM DES EXPLOSIONS NUCLEAIRES AERIENNES

Les évaluations, portant sur la quantité de plutonium dispersé lors des explosions aériennes, reposent sur la mesure d'échantillons prélevés dans l'environnement. Il est donc utile de connaître les modalités de cette contamination radioactive afin de mieux appréhender les quantités de plutonium mises en jeu.

L'ensemble des retombées radioactives se répartit schématiquement en trois zones /UNS77/ /UNS82/ :

a) la retombée "locale"

Elle concerne principalement les particules de gros diamètre qui se déposent dans un rayon de 100 km environ. Dans le cas d'un essai en surface, la retombée locale peut concerner 50 % des produits radioactifs dispersés. Cette retombée n'est généralement pas prise en considération, notamment pour les évaluations dosimétriques mondiales.

b) la retombée "troposphérique"

Elle est constituée de poussières plus fines qui n'atteignent pas la stratosphère (environ 9 km d'altitude en région polaire et 17 km en région

équatoriale). Ces poussières retombent à des centaines ou à des milliers de kilomètres du point "zéro".

c) la retombée "stratosphérique"

Cette composante constitue l'essentiel de la contamination radioactive mondiale. La pénétration du nuage radioactif dépend de la puissance de l'explosion et de sa latitude. La stratosphère constitue alors un "réservoir" de particules radioactives qui circuleront plusieurs mois, voire plusieurs années, avant de repasser dans la troposphère et de se déposer au sol. Ce séjour est d'autant plus court que l'on se rapproche des régions polaires. L'essentiel de la contamination radioactive (phase solide) concerne l'hémisphère d'éjection.

1.1. Masse et activité du plutonium dispersé

Le plutonium, que l'on retrouvera dans l'environnement à la suite des retombées radioactives, peut avoir deux origines distinctes :

- fraction du plutonium de la charge nucléaire qui n'a pas fissionné,
- activation neutronique de l'uranium-238.

Le tableau suivant donne une estimation du plutonium produit par les essais nucléaires dans l'atmosphère - /UNS82/ page 238 - :

Tableau n° 1 - CARACTERISTIQUES DES RETOMBÉES PLUTONIFERES

Isotope	Période (an) ***	Masse d'isotope produit		Activité produite **		Masse (t)
		Masse ²³⁹ Pu produit		(Bq)	(Ci)	
²³⁹ Pu	24 110	1		$7,8 \cdot 10^{15}$	$2,1 \cdot 10^5$	3,397
²⁴⁰ Pu	6 550	0,18		$5,2 \cdot 10^{15}$	$1,4 \cdot 10^5$	0,618
²⁴² Pu	376 000	0,032		$1,6 \cdot 10^{13}$	$4,3 \cdot 10^2$	0,110
²⁴¹ Pu *	14,4	0,013		$1,7 \cdot 10^{17}$	$4,6 \cdot 10^6$	0,0446
²³⁸ Pu	87,74	0,00016		$3,3 \cdot 10^{14}$	$8,9 \cdot 10^3$	0,0005

Nota :

* émetteur bêta qui donne par décroissance l'américium-241 ($T = 432,6$ a)

** la retombée "locale" n'est pas prise en compte dans ce calcul

*** Valeurs recommandées par le LMRI

La masse totale des isotopes de plutonium est égale à 4,17 tonnes (calculée avec une activité spécifique égale à $6,21 \cdot 10^{-2}$ Ci pour le ^{239}Pu).

Cette valeur est en bon accord avec un rapport /AEN81/ établi par un groupe d'experts de l'AEN qui donne les précisions suivantes :

- masse dispersée dans l'ensemble du monde $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu} = 4,2$ tonnes
- activité $^{239}\text{Pu} + ^{240}\text{Pu} = 7,2 \cdot 10^{15}$ Bq + $4,8 \cdot 10^{15}$ Bq = $1,2 \cdot 10^{16}$ Bq

Ce rapport précise par ailleurs que :

- 1) $4 \cdot 10^{15}$ Bq de plutonium se sont déposés aux emplacements des explosions nucléaires et dans leur voisinage (soit environ 1,4 tonne) ;
- 2) l'activité de l'américium-241, émetteur alpha produit par décroissance du plutonium-241, augmente d'un quart environ l'activité alpha totale du plutonium dispersé.

L'importance de l'activité de l'américium-241 est liée à la décroissance notable du plutonium-241 ($T = 14,4$ a) dans la mesure où 90 % du plutonium dispersé dans le monde résulte des explosions nucléaires aériennes qui ont précédé les accords USA-URSS du 5 août 1963.

La désintégration totale du plutonium-241 donnera 44,6 kg d' ^{241}Am , soit $1,53 \cdot 10^5$ Ci ($5,7 \cdot 10^{15}$ Bq),

ce qui correspond à une augmentation d'environ 44 % de l'activité alpha totale actuelle.

1.2. Comportement du plutonium déposé

Il existe une littérature très abondante sur le comportement du plutonium dans l'environnement*. Elle concerne principalement le dépôt mondial. On trouve aussi quelques données relatives à la retombée locale (Site d'essai du Névada - NTS -) observée lors d'un essai nucléaire ou après des "tirs de sécurité"

*voir notamment les actes du symposium de SAN FRANCISCO (17-21 novembre 1975) publiés par l'AIEA en 1976 "Transuranium nuclides in the environment".

au cours desquels la charge nucléaire est détruite par un explosif classique /ROM71/, /HAK81/. Les mesures portent sur les aérosols de plutonium, constitués probablement de particules solides insolubles, qui se déposent sur la terre et les océans /HAR71/.

Dans les océans : le plutonium atteint des profondeurs supérieures à celles des produits de fission (^{137}Cs et ^{90}Sr) à périodes longues /UNS77/.

Il se concentre dans toutes espèces marines. Selon NOSHKIN /NOS72/, l'exposition des espèces marines au plutonium est plus importante que celles relatives au césium et au strontium des retombées. On observe cependant que cette concentration diminue lorsque la complexité des organismes augmente.

Sur le sol : le plutonium déposé migre lentement dans le sol.

Dans les sols sableux, 70 % de l'activité se trouve dans les quatre premiers centimètres et pratiquement 100 % dans 30 cm /UNS77/. Cependant des écarts, liés à la structure du terrain, la teneur en matière organique, le PH, l'érosion, par l'eau et le vent, l'action de l'homme (culture, engrains) peuvent être observés.

Le problème de la remise en suspension dans l'air du plutonium déposé a fait l'objet de plusieurs évaluations. Ceci s'explique par le fait que l'atteinte de l'organisme par voie respiratoire est la plus critique.

Les données se rapportent aux valeurs du "facteur de resuspension R_F ", tel que :

$$\begin{array}{ccc} \text{Activité surfacique . Facteur de resuspension} & = & \text{Activité volumique de l'air} \\ \text{du sol} & & \\ \downarrow & + & + \\ \text{Ci.m}^{-2} & & \text{m}^{-1} \\ & & \text{Ci.m}^{-3} \end{array}$$

Les valeurs de R_F publiées pour toutes sortes de surfaces varient entre 10^{-2} et 10^{-13} m^{-1} , mais si l'on considère des situations plus concrètes, l'intervalle devient 10^{-4} à 10^{-10} m^{-1} /ANG77/. Des mesures effectuées en 1974 à SAVANNAH RIVER à l'occasion de préparation agricole par un tracteur, d'un sol contaminé au plutonium ($2,07 \cdot 10^{-3} \text{ Ci/m}^2$ pour les 5 premiers cm) ont donné des valeurs de R_F , comprises entre (0,5 et 10) 10^{-7} m^{-1} , suivant la localisation de la prise d'échantillon /MIL76/.

1.3. Equivalents de dose engagée

Les expérimentations animales, portant notamment sur l'absorption gastro-intestinale du plutonium, ont montré que le tube digestif ne constitue pas une voie de pénétration importante chez l'adulte /STAT78/, /MET82/.

La CIPR a retenu dans sa publication n° 30 une fraction absorbée comprise entre 10^{-4} (formes solubles) et 10^{-5} (formes insolubles) pour l'ensemble des isotopes. C'est par la voie respiratoire que s'effectue la contamination interne. Les mesures de concentration du plutonium dans l'air ont montré que les valeurs maximales avaient été atteintes en 1963. Dix ans après, cette concentration avait décrue, dans la région de New-York, de plus d'un facteur 100 /BEN75/ - figure 1 -.

Les platoniums et l'américium n'apportent qu'une faible contribution (1,3 %) à l'équivalent de dose engagée effective totale délivrée à la population mondiale à la suite des essais nucléaires /UNS82/ - 280 mrem sur la vie entière, soit environ 4 mrem/a en moyenne - pour la totalité des produits radioactifs.

Les équivalents de dose engagée les plus importants concernent les populations vivant dans la zone tempérée de l'hémisphère Nord :

- 350 mrem sur la vie entière,
soit environ 7 mrem/a en moyenne.

Si l'on rapporte l'équivalent de dose engagée durant la vie entière (mrem) par la population mondiale la plus exposée, à l'énergie dissipée par les explosions aériennes (mégatonnes de TNT), on obtient un rapport grossièrement voisin de 1 mrem/Mt.

Tableau n° 2 - EQUIVALENT DE DOSE ENGAGEE ET ENERGIE DISSIPÉE PAR LES TESTS AERIENS

Evaluation	Période	Nombre de tirs aériens	Energie (Mt de TNT)	Rapport (mrem/Mt)
/CAR77/	1945-75	383	325,0	1,08
/UNS82/	1945-75 1945-78	416 422	540,6 544,8	0,65 0,64

II - LE PLUTONIUM DISPERSE LORS D'ACCIDENTS

Les contaminations au plutonium résultant de situations accidentelles connues et relatées se traduisent généralement par des activités mises en jeu extrêmement faibles /AEN81/ comparées aux quantités injectées lors d'explosions nucléaires aériennes. Les surfaces contaminées et les populations impliquées sont également limitées. Ceci ne signifie cependant pas que les doses engagées soient nécessairement faibles devant celles évaluées pour la population mondiale.

Une exception à la situation d'impact local a cependant été connue avec la rentrée accidentelle dans l'atmosphère d'un satellite américain "SNAP 9A" qui a brûlé au-dessus de l'océan indien en avril 1964.

L'activité du plutonium-238 - 17 000 Ci - soit environ 1 kg - ainsi libérée est supérieure à celle résultant des essais nucléaires aériens ($6,3 \cdot 10^{14}$ Bq au lieu de $3,3 \cdot 10^{14}$ Bq).

Parmi les autres accidents, on notera brièvement /CFD80/, /AEN81/ :

Tableau n° 3 - LE PLUTONIUM DISPERSE LORS D'ACCIDENTS OU D'INCIDENTS

Année	Les faits .	Conséquences
1962	- trois missiles américains THOR qui avaient mal fonctionné sont détruits en vol.	- ^{239}Pu dispersé au-dessus de l'océan pacifique près de l'Île Johnston (quantité inconnue).
1962	- défaillance en vol d'une sonde lunaire Appolo qui est tombée dans l'océan pacifique près de la fosse des Tonga.	- $1,7 \cdot 10^{15}$ Bq de ^{238}Pu (46 000 Ci) et $1,2 \cdot 10^{12}$ Bq de ^{239}Pu (32,4 Ci) sont au fond de la mer.
1966	- un bombardier américain B52 porteur de quatre bombes explose par collision lors d'un ravitaillement en vol au voisinage de Palomarès (Espagne). Deux bombes sont endommagées par l'explosion d'une partie de l'explosif conventionnel.	- 226 hectares contaminés selon les espagnols, 457 selon l'AEC. - des débris de plantes - 100 m ³ - et de la terre contaminée - 300 m ont été évacués aux USA. - l'activité dispersée pourrait atteindre 10^{11} Bq (2,7 Ci).
1968	- un bombardier B52 s'écrase sur la glace dans une baie de l'océan arctique, à 11 km de la base aérienne de Thulé (Groenland) et explose.	- 22 hectares sont contaminés par 3,1 kg de plutonium. - la neige et les débris contaminés (600 fûts) sont évacués aux USA.
1969	- un contrôle effectué autour du Site de Rocky Flats (Colorado) montre des niveaux de contamination supérieurs à 0,2 mCi/m ² . Cette contamination est relative à une série d'incendies ainsi qu'à un rejet permanent provenant de réservoirs d'huile de coupe contaminée stockée en plein air.	- dispersion du rejet permanent compris entre $2 \cdot 10^{11}$ et $4 \cdot 10^{11}$ Bq (5,4 à 10,8 Ci).

III - LE PLUTONIUM ENGAGE DANS LES ACTIVITES INDUSTRIELLES

Le plutonium comme l'ensemble des transuraniens est produit en quasi-totalité dans les réacteurs nucléaires des quatre "filières" qui ont atteint le stade de la réalisation industrielle :

- la filière "uranium naturel-graphite gaz" et ses dérivés,
- la filière "eau ordinaire",
- la filière "eau lourde",
- la filière à "neutrons rapides".

Dans le cycle du combustible des trois premières filières, le plutonium, en l'absence de situation accidentelle, ne quitte le combustible que lors du retraitement. Dans la filière à neutrons rapides, le plutonium est ouvrage dès le début du cycle.

3.1. Evaluation du plutonium produit

Au 1er janvier 1983, 86 % de la puissance électro-nucléaire installée dans le monde entier concerne la filière à eau légère. Compte tenu des taux de combustion atteints c'est dans cette filière que se produira la majeure partie du plutonium mondial. Les experts de l'AEN ont estimé /AEN81/ qu'au 1er janvier 1979 les centrales électronucléaires de l'ensemble du monde avaient produit 77 tonnes de plutonium. Les armes nucléaires avaient pour leur part nécessité la production d'environ 300 tonnes de plutonium dans des réacteurs plutonigènes.

Si l'on considère la production d'électricité d'origine nucléaire dans le monde depuis cette date, l'on obtient /CEA83/ /LER83/ :

Tableau n° 4 - PRODUCTION D'ELECTRICITE D'ORIGINE NUCLEAIRE DANS LE MONDE ENTIER

Année	1979	1980	1981	1982	1979 à 1982	Cumul fin 1982
TWh	641,2	715,1	842,2	920,6	3 119,1	6 117,6

En faisant l'hypothèse que cette énergie électrique a été produite par des réacteurs du type "eau ordinaire", on peut calculer le plutonium produit en fixant les paramètres suivants :

- taux de combustion massique = $33\ 000 \text{ MW}_{\text{th}} \text{ j}^{-1} \text{ t}^{-1}$ (soit $0,264 \text{ TW}_{\text{e}} \text{ h}^{-1} \text{ t}^{-1}$).

- plutonium formé par tonne
de combustible irradié = 8,859 kg /CAS82/ Annexe II.

La quantité de plutonium est égale à :

$$\frac{3\ 119,1}{\text{TW}_e \text{h}} \cdot \frac{1}{0,264} \cdot 8,859 = 104\ 667 \text{ kg}$$

$$+ + + +$$

$$(\text{TW}_e \text{h})^{-1} \cdot \text{t} \quad \text{kg} \cdot \text{t}^{-1} \quad \text{kg}$$

Le stock mondial de plutonium, contenu pour la plus grande partie dans le combustible irradié, représenterait donc environ 175 tonnes.

En tenant compte des prévisions établies pour 1985 /CEA83/, calculées en fonction des probabilités de mises en service et des régimes de fonctionnement des réacteurs, la production mondiale cumulée d'électricité d'origine nucléaire sera voisine de 10 000 TWh.

Cette énergie correspond, dans le cadre des hypothèses décrites précédemment, à un stock mondial, fin 1985, égal à environ 300 t de plutonium "civil"

Si l'on compare la quantité de plutonium disséminée lors des essais nucléaires aériens (4,2 tonnes) au stock de plutonium mondial "civil" (300 t) et "militaire" (300 t), l'on obtient :

- fin 1982 1,2 % du stock mondial
- fin 1985 0,7 % du stock mondial.

3.2. Immersion des déchets solides

Entre 1946 et 1970, les Etats-Unis ont procédé à des immersions dans l'océan atlantique (79 507 Ci) et dans l'océan pacifique (14 766 Ci). La quasi-totalité de cette activité (99,0 %) a été déversée entre 1946 et 1960 /HOL82/.

Nous n'avons trouvé dans aucun document la part relative aux déchets alpha.

En février 1965, l'AEN* entreprenait une étude sur les possibilités d'évacuation de déchets radioactifs dans l'atlantique.

* L'Agence de l'OCDE pour l'Energie Nucléaire -AEN - a été créée le 20 avril 1972 en remplacement de l'Agence Européenne pour l'Energie Nucléaire de l'OCDE, lors de l'adhésion du JAPON. L'AEN regroupe actuellement, outre les pays membres européens de l'OCDE, l'Australie, le Canada, les Etats-Unis et le Japon.

La première opération débute le 17 mai 1967. Le tableau suivant donne l'activité alpha des déchets immersés pour l'ensemble des participants, ainsi que celle relative aux déchets du Royaume Uni. Les valeurs montrent la part prépondérante prise par ces derniers /AEN80/, /HOL82/, /ZER82/.

Tableau n° 5 - LES IMMERSIONS DE DECHETS SOLIDES DE L'AEN

Années	Rejets alpha		Fraction RU/TOTAL %
	TOTAL curies α	Royaume-Uni curies α	
1967	250	91	36,4
1969	500	390	78,0
1971	630	72	11,4
1972	680	647	95,1
1973	740	740	100
1974	420	399	95,0
1975	780	704	90,3
1976	880	700	79,5
1977	950	930	97,9
1978	1 100	814	74
1979	1 415	1 381	97,6
1980	1 853	1 791	96,7
1981	2 117	2 032	96,0
1982	1 364	1 264	92,7
1967-1982	13 679	11 955	87,4

NOTA : 1) Aucune immersion n'a été effectuée sous l'égide de l'AEN en 1968 et 1970 bien que des déchets aient été immersés par le Royaume-Uni.

2) De 1949 à 1966, le Royaume-Uni a procédé presque tous les ans à des opérations d'immersion. Durant la période 1949-77, 64 000 tonnes de déchets solides ont été rejetées renfermant 10 500 curies-alpha /CFD80/ - page 204 -.

3) En 1976, les déchets solides plutonifères stockés en attente d'immersion contiennent un tiers de tonne de plutonium dans 3 000 m³ /FLO76/ - page 137.

Pour traduire l'activité alpha du plutonium rejeté, il est nécessaire de connaître la composition isotopique du produit. Cette donnée n'est pas accessible. Toutefois, il est possible d'évaluer les taux de combustion moyen des combustibles à uranium naturel retraités à l'usine de WINDSCALE. Nous allons utiliser les résultats de codes de calcul qui nous donnent les compositions massiques du plutonium en fonction du taux de combustion.

Tableau n° 6 - EVOLUTION DES CARACTERISTIQUES NUCLEAIRES DU PLUTONIUM

Taux de combustion (MWj t^{-1})	$^{239}_{\text{Pu}}$ (0,0621)	$^{240}_{\text{Pu}}$ (0,2275)	$^{241}_{\text{Pu}}$ (103,05)	$^{242}_{\text{Pu}}$ (0,0393)	Activité spécifique Ci/g	Poids du curie α g
400	96,2	3,6	0,2	0,00	0,0679	14,72
1 000	91,6	7,7	0,7	0,03	0,0744	13,44
1 500	87,5	11,2	1,2	0,1	0,0799	12,52
2 000	85,0	13,0	1,8	0,2	0,0824	12,13
2 500	82,0	15,1	2,3	0,3	0,0854	11,71
3 000	79,3	17,5	2,8	0,4	0,0892	11,21
3 500	76,7	19,4	3,3	0,6	0,0920	10,87

Note : Valeurs entre parenthèses = activité spécifique de l'isotope en Ci.g $^{-1}$.

Nous pouvons valablement supposer que le plutonium rejeté avant 1967 provenait du retraitement de combustible ayant un taux de combustion moyen compris entre 1 000 et 2 000 MWj t^{-1} (poids du curie α : 12,13 à 13,44 g).

Pour la période 1967-82, le calcul se fera avec un taux de combustion compris entre 2 000 et 3 500 MWj t^{-1} (poids du curie α : 10,87 à 12,13 g).

Le poids du plutonium contenu dans les déchets solides immergés par le Royaume-Uni est donné dans le tableau suivant :

Tableau n° 7 - PLUTONIUM IMMERGE PAR LE ROYAUME-UNI

Période	Activité en Ci	Poids en kg
1949-77	~ 10 500	127 à 141
1978-82	~ 7 900	86 à 96
1949-82	~ 18 400	213 à 237

Si l'on applique les mêmes hypothèses à l'ensemble des déchets solides immersés entre 1967 et 1982 sous l'égide de l'AEN, l'on obtient :

- masse de plutonium rejetée : 149 à 167 kg.

3.3. Les rejets d'effluents liquides et gazeux

Les effluents gazeux des usines de retraitement du combustible sont, exception faite des situations accidentelles, très faiblement chargés en plutonium comme le montrent les rejets annuels des usines de WINDSCALE, La HAGUE et MARCOULE /UNS82/ - page 317 :

Tableau n° 8 - REJETS RADIOACTIFS GAZEUX DES USINES DE RETRAITEMENT

Année	WINDSCALE		La HAGUE		MARCOULE	
	TBq	Ci	TBq	Ci	TBq	Ci
1975	0,0028	0,0757	$5,9 \cdot 10^{-10}$	$1,6 \cdot 10^{-8}$	$8,1 \cdot 10^{-7}$	$2,2 \cdot 10^{-5}$
1976	0,0019	0,0514	$7,4 \cdot 10^{-10}$	$2,0 \cdot 10^{-8}$	$6,1 \cdot 10^{-7}$	$1,6 \cdot 10^{-5}$
1977	0,0010	0,0270	$1,1 \cdot 10^{-7}$	$3,0 \cdot 10^{-6}$	$3,2 \cdot 10^{-6}$	$8,6 \cdot 10^{-5}$
1978	0,00089	0,0241	$1,1 \cdot 10^{-6}$	$3,0 \cdot 10^{-5}$	$1,7 \cdot 10^{-6}$	$4,6 \cdot 10^{-5}$
1979	0,0010	0,0270	-			

Les rejets annuels d'effluents liquides radioactifs de ce type d'installations nucléaires sont plus importantes, notamment dans le cas de WINDSCALE où contrairement aux usines de MARCOULE et La HAGUE aucun traitement chimique préalable (coprécipitation) n'est appliqué.

Le tableau suivant regroupe les données relatives aux usines de WINDSCALE et de La HAGUE. La figure 2 illustre l'évolution de l'activité des rejets "alpha" dans les effluents liquides des deux usines.

Tableau n° 9 - REJETS ANNUELS D'EFFLUENTS LIQUIDES RADIOACTIFS

- Activités en curies -

Année	Usine de WINDSCALE			Usine de La HAGUE		Usine de MARCOULE
	238+239+240 Pu	241 Am	Total alpha	plutonium	Total alpha	Total alpha
1967			960	0,32	0,51	0,422
1968	828	576	1 416	0,85	1,01	0,397
1969	816	396	1 356	0,36	0,45	1,372
1970	936	540	1 656	0,64	0,77	0,290
1971	1 128	1 020	2 644	3,92	4,05	0,202
1972	1 548	2 172	3 720	1,79	3,09	0,231
1973	1 776	2 952	4 728	2,19	3,58	0,194
1974	1 248	3 192	4 572	14,91	27,01	0,40
1975	1 200	984	2 309	7,08	13,34	0,51
1976	1 272	324	1 616	4,23	9,93	0,30
1977	984	99	1 241	6,46	16,92	0,35
1978	1 597	214	1 837	5,80	14,00	0,35
1979			1 680	6,37	18,55	0,706
1980				5,02	13,83	2,398
1981					14,53	1,255
TOTAL	14 998	12 469	29 685	59,94	141,57	9,38

Références : /ANC79/, /DAV79/, /PEN79/, /CFD80/, /GUE81/, /LUY82/, /UNS82/,
 /TAY82/ + données personnelles.

NOTA : -On trouvera les données relatives aux activités β et γ des effluents liquides de WINDSCALE et de La HAGUE dans /ANC79/, /GER79/, /CFD80/, /TAY82/ /WOO82/ et /CAS82/, Annexe 7.

- Les différentes publications ne donnent pas toujours des valeurs de rejet concordantes en tous points.

En appliquant les hypothèses retenues pour les déchets solides immergés, nous pouvons calculer les masses de plutonium rejetées en mer avec les effluents liquides :

- <u>WINDSCALE</u> 1968-79 masse de plutonium	163 à 182 kg
masse d'américium-241	3,64 kg
- <u>LA HAGUE</u> 1967-80 masse de plutonium	0,65 à 0,73 kg.

La comparaison des rejets liquides contaminés alpha montre que les quantités de plutonium rejetées par l'usine de WINDSCALE sont 250 fois plus importantes que celle de l'usine de La HAGUE.

Les rejets alpha totaux pour la période 1967-79 sont, pour leur part, dans un rapport 260.

3.4. Les déchets en attente de conditionnement

Les déchets plutonifères des usines de retraitement sont classés habituellement en deux familles.: les déchets de "procédé" et les déchets technologiques. La teneur en plutonium des premiers va varier en fonction des techniques utilisées pour séparer le combustible de la gaine qui l'entoure. Les déchets technologiques sont liés aux modes de gestion des installations de l'usine et de la fiabilité des dispositifs qui les composent. L'augmentation des interventions en zone active entraîne de façon générale une augmentation du volume des déchets technologiques.

Il existe assez peu de données de synthèse sur l'importance des pertes en plutonium dans le retraitement et dans la fabrication des combustibles mixtes " $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ ".

Usine de WINDSCALE

La majeure partie des données publiées dans la littérature scientifique conventionnelle se présente sous la forme de "fourchettes" théoriques assez larges, exprimées en pour cent de la quantité de plutonium entrant dans l'usine. Le rapport présenté par Sir FLOWERS en septembre 1976 au Parlement du Royaume-Uni donne sur l'Usine de WINDSCALE /FLO76/ les premiers chiffres relatifs à une usine de retraitement de taille importante. Par ailleurs, une synthèse des évaluations et de quelques résultats industriels ont été publiés par la CFDT - /CFD80/, /CFD81/.

Le tableau suivant donne les activités "alpha" des déchets non conditionnés de l'Usine de WINDSCALE /FLO76/ - page 139 :

Tableau n° 10 - DECHETS NON CONDITIONNES STOCKES A WINDSCALE

Type de déchet	Volume (m^3)		Activité "alpha" (kCi)	
	1974	1985	1974	1985
Gaines d'éléments combustibles (magnésium stocké sous eau)	4 000	13 000	10	100
Boues de traitement chimique (procédé abandonné)	5 000	5 000	10	10
Déchets contaminés alpha à faible teneur β, γ (non traités)	3 000	5 000	60	100
Effluents haute activité	550	1 800	500	2 000
TOTAL	12 550	24 800	580	2 210

L'activité alpha totale des déchets non conditionnés représentait donc en 1974 environ 580 kCi, soit $2,15 \cdot 10^{16}$ Bq.

Si l'on compare cette activité à celle des produits émetteurs alpha dispersés par les explosions nucléaires aériennes :

$$\begin{aligned}
 & 1,6 \cdot 10^{16} \text{ Bq relatifs à l'ensemble des plutonium émetteurs} \\
 & + 0,57 \cdot 10^{16} \text{ Bq d'américium-241 dû à la décroissance totale du } ^{241}\text{Pu.} \\
 & = 2,17 \cdot 10^{16} \text{ Bq d'émetteurs alpha.}
 \end{aligned}$$

On peut dire que l'activité des déchets alpha non conditionnés de l'usine de WINDSCALE est égale à l'activité alpha des retombées nucléaires.

Si les prévisions pour 1985 du rapport /FLO76/ venaient à se réaliser, l'activité alpha stockée en attente de conditionnement sera à cette date égale à $2\ 210 \text{ kCi}$ ($8,2 \cdot 10^{16}$ Bq), soit 3,8 fois plus importante que celle évaluée en 1974.

La conversion de l'activité alpha en masse de plutonium n'est pas immédiate en l'absence de données sur l'américium-241. Cependant, le rapport FLOWERS précise (page 140) que les déchets solides - Tableau 10 - renferment un peu moins de 0,5 tonne de plutonium dans $12\ 000\ m^3$. Ces déchets contiennent donc environ 11,4 kg d'américium-241 dans l'hypothèse où le plutonium aurait été produit avec un taux de combustion voisin de $2\ 000\ MWj.t^{-1}$.

Le rapport "FLOWERS" ne donne aucune indication sur la quantité de plutonium contenue dans les effluents liquides de Haute Activité qui recèlent pourtant une activité six fois plus importante que celle des déchets solides non conditionnés.

Si l'on suppose que la composition de ces déchets liquides est

a) identique à celle des déchets solides non conditionnés, l'on obtient :

- masse de plutonium environ 3 tonnes
- masse d'américium-241 ... environ 71 kg,

b) identique à celle des rejets liquides en mer, l'on obtient :

- rapport d'activité Pu/(Am+Pu) = 0,546
- masse de plutonium environ 3,3 tonnes
- masse d'américium-241 ... environ 66 kg.

Usine de La HAGUE

La Commission CASTAING a eu des difficultés pour obtenir le détail des taux de pertes en plutonium dans les déchets, conditionnés ou non, de l'Usine de La HAGUE. Aussi a-t-elle recommandé /CAS82/ - page 4 :

de rendre publique les données détaillées des performances en matière de taux de perte en plutonium dans les déchets des usines de retraitement de La HAGUE ou de MARCOULE. Pour ce qui concerne cette dernière Usine, classée secrète pour les besoins de la défense, le groupe souhaite que soit étudiée la possibilité de déclassifier les unités non directement concernées par la fabrication des matières fissiles à usage militaire, telles que celles qui traitent et conditionnent les déchets.

Les données fournies par la COGEMA à la Commission ont été reproduites dans les pièces jointes /GUI82/ du rapport CASTAING.

Nous rappelons ici les valeurs relatives aux bilans couvrant les périodes les plus étalées dans le temps.

Tableau n° 11 - REPARTITION DES MASSES DE PLUTONIUM DANS LE RETRAITEMENT
DES COMBUSTIBLES IRRADIES (exprimée en %)

"Usine de la HAGUE"

Combustible (période)	Plutonium "entré"	Plutonium "sorti"	Pu dans les PF	Pu dans les boues	Pu dans les déchets solides	Ecart de bilan
"eau ordinaire" (1976-1981)	100	98,75	0,16	0,59	0,34	+ 0,15
"graphite-gaz" (1966-1981)	100,71 *	98,02	1,69	0,39	0,39	+ 0,60
(1966-1975)	100,83 *	97,40	0,18	1,84	0,63	+ 0,77

* Plutonium dans le combustible dissous (100 %) + pertes en amont.

En l'absence de données précises sur les pertes pondérales, le document /GUI82/ procède à une évaluation fondée d'une part sur les pertes exprimées en % d'autre part sur un calcul théorique des quantités de plutonium présentes dans le combustible retraité.

L'ensemble des données produites dans le rapport /CAS82/ et ses annexes permet d'évaluer ces masses :

- 2 700 kg environ dans le combustible "eau ordinaire" (1976-81)
- 3 400 kg environ dans le combustible "UNGG" (1966-75)
- 7 000 kg environ dans le combustible "UNGG" (1966-81).

On peut ainsi calculer les pertes suivantes :

Tableau 12 - PLUTONIUM DANS LES DECHETS NON CONDITIONNES A LA HAGUE (kg)

Combustible (période)	Pu dans les PF	Pu dans les boues	Pu dans les déchets solides	Ecart de bilan	Pertes totales
"eau ordinaire" (1976-1981)	4,3	15,9	9,2	4,1	33,5
UNGG (1966-1981)	117,5		27,1	41,7	186,3
TOTAL (1966-1981)	137,7		36,3	45,8	219,8

Les pertes totales représenteraient donc 2,27 % dont 1,42 % dans les boues résultant du traitement chimique des effluents liquides radioactifs. Comme l'indique M. GUILLAUMONT, il est probable que les pourcentages de pertes fournies par la COGEMA conduisent à une sous-estimation des pertes en plutonium, notamment dans les boues de coprécipitation - 1,8 % au lieu de 1,4 % - /GUI82/.

IV - CONCLUSIONS

- La comparaison de l'activité "alpha" dispersée lors des explosions nucléaires aériennes avec celle des déchets liquides ou solides évacués ou stockés par les usines de retraitement a montré que pour la seule usine de WINDSCALE l'égalité était atteinte.

- Les usines de retraitement du combustible irradié constituent le maillon du cycle du combustible des réacteurs à "eau ordinaire" qui produit des déchets renfermant des transuraniens émetteurs "alpha", dont les isotopes du plutonium en particulier. Les activités spécifiques des déchets produits jusqu'alors, comme leurs compositions isotopiques, sont très variables, ce qui rend difficile toute évaluation qualitative et quantitative.

Si le retraitement de combustible plus standardisé, associé à des améliorations portant sur les dispositifs techniques comme sur les modalités de gestion des installations, devrait permettre une meilleure connaissance des déchets, il ne dispense pas d'une meilleure gestion de l'héritage du passé.

- La quantité de plutonium dispersée en mer lors des rejets d'effluents radioactifs liquides effectués par l'usine de La HAGUE est 250 fois plus faible que celle rejetée par WINDSCALE. Cependant, les boues radioactives, résultant du traitement chimique qui a permis cette importante réduction des rejets en mer, sont stockées provisoirement et nécessiteront une reprise, un traitement et un conditionnement qui ne sont pas encore arrêtés. A la mi-80, le volume de boues radioactives stockées en vrac à La HAGUE était environ égal à 3 500 m³. Il atteindra 6 000 m³ en 1987 /CAS82/ - page 27 -.

- Les immersions de déchets solides plutonifères consistent en une modalité de stockage définitif irréversible qui, dans l'état actuel de nos connaissances, devrait être exclue de la gamme des solutions retenues pour l'évacuation des déchets.

- L'augmentation croissante du tonnage des combustibles irradiés dans les centrales électronucléaires du monde entier se traduira, même dans l'hypothèse d'une très faible augmentation du parc mondial des réacteurs, par une croissance annuelle du plutonium produit égale à environ 35 tonnes par an. Parallèlement on aura fabriqué 1,9 t/a de neptunium, 1 t/a d'américium et 110 kg/a de curium. La radiotoxicité de ces actinides mineurs est également à prendre en compte dans les analyses de risques compte tenu des nouvelles données retenues par la CIPR dans ses publications 26 et 30 (voir /CAS82/, Annexe 6).

- Pour toutes opérations de retraitement du combustible irradié, le traitement des déchets alpha qui en résultent devrait être la règle afin de recycler le plutonium, de séparer les autres transuraniens en vue d'un traitement spécifique et de réduire le volume et l'activité des déchets qui relèvent d'un stockage définitif en profondeur notamment.

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

- /AEN80/ Agence pour l'Energie Atomique
Réévaluation de la validité du Site d'immersion de déchets radioactifs dans la région Nord-Est de l'Atlantique
Edit. OCDE (1980)
- /AEN81/ Agence pour l'Energie Nucléaire
Comportement mésologique et biologique du plutonium et de certains autres éléments transuraniens
Edit. OCDE (1981)
- /ANC79/ ANCELLIN J., GUEGUENIAT P., GERMAIN P.
Radioécologie marine : Etude du devenir des radionucléides rejetés en milieu marin et application à la radioprotection
Edit. Eyrolles, PARIS (1979)
- /ANG77/ ANGELETTI L.
Aspects pratiques du comportement du plutonium dans l'environnement "Radioprotection", Vol. 12, n° 1, pp(3-26) ,(1977)
- /BEN75/ BENNET B.G.
Transuranic element pathways to man
in "Transuranium nuclides in the environment", Edit. IAEA (1976)
- /CAR77/ CARTER M.W. and MOCHISSI A.A.
Three decades of nuclear testing
Health Physics, Vol. 33, pp(55-71) ,(1977)
- /CAS82/ Commission CASTAING
"Rapport du groupe de travail sur la Gestion des Combustibles Irradiés"
Décembre 1981 - Novembre 1982
Edit. Ministère de la Recherche et de l'Industrie, PARIS (1982)
- /CEA83/ Commissariat à l'Energie Atomique - Département des Programmes
"Mémento sur l'Energie"
Edit. CEA-DPG, PARIS (1983)
- /CFD80/ Syndicat CFDT de l'Energie Atomique
"Le dossier électronucléaire"
Edit. Le Seuil - Collection "Points Sciences", PARIS (1980)
- /CFD81/ Syndicat CFDT de l'Energie Atomique
"Stockage et retraitement des combustibles irradiés issus des réacteurs à eau ordinaire"
Edit. BN/CFDT - CEN-Saclay (janvier 1981)
Pièce jointe n° B4 au rapport /CAS82/
- /DAV79/ DAVIS W. Jr
Radioactive effluents from nuclear power stations and fuel reprocessing plants in Europe 1972-1976
Nuclear Safety, Vol. 20, n° 4 pp(468-475) Jul-Aug (1979)

- /FLO76/ FLOWERS B.
 "Royal commission on environmental pollution"
 Sixth report: Nuclear power and the environment
 Edit. OYEZ Press Limited, LONDRES (1976)
- /GER79/ GERMAIN P., MASSON M., BARON Y.
 Etude de la répartition de radionucléides émetteurs gamma chez des indicateurs biologiques littoraux des côtes de la Manche et de la mer du Nord de février 1976 à février 1978
 Rapport CEA-R 5017, Edit. CEA (1979)
- /GUE81/ GUEGUENIAT P., LE HIR P.
 Données nouvelles sur la dispersion des radionucléides dans la Manche dans "Impact of radionuclides releases into the marine environment"
 Edit. AIEA, pp(481-499), (1981)
- /GUI82/ GUILLAUMONT R.
 Pertes de plutonium lors du retraitement des combustibles irradiés à La HAGUE
 Pièce jointe n° CI.4.9 au rapport /CAS82/
- /HAK81/ HAKONSON T.E., WATTERS R.L., HANSON W.C.
 The transport of plutonium in terrestrial ecosystems
 Health Physics, Vol. 40, pp(63-69), (January 1981)
- /HAR71/ HARLEY J.H.
 World wide Plutonium Fallout From Weapons tests
 in Proceeding of environmental Plutonium Symposium, pp(13-19)
 LOS ALAMOS (New Mexico) - 4-5 August 1971
 LOS ALAMOS Scientific Laboratory Report LA-4756 (1971)
- /HOL82/ HOLCOMB W.F.
 A history of ocean disposal of packaged low-level radioactive waste
 Nuclear Safety, Vol. 23, n° 2, pp(183-197), March-April (1982)
- /LAR77/ LARKIN M.J.
 Liquid and airborne effluents from WINDSCALE nuclear fuel reprocessing plants
 dans le Séminaire sur "Les effluents radioactifs des usines de retraitement du combustible irradié"
 KARLSRUHE - 22-25 novembre 1977
 Edit. CEE - Luxembourg, février (1978)
- /LER83/ LE RALLE J.C.
 "Les centrales nucléaires dans le monde" - Situation au 1er janvier 1983
 Edit. CEA-DPg (1983)
- /LUY82/ LUYKX.F , FRASER
 Radioactive effluents from nuclear fuel reprocessing plants in the european community - 1974-1978
 Nuclear Safety, Vol. 23, n° 6, pp(710-720), novembre-décembre (1982)
- /MET82/ METIVIER H.
 Devenir biologique et toxicité du plutonium
 dans "Toxiques nucléaires", Edit. MASSON, PARIS (1982)

- /MIL76/ MILHAM R.C., SCHUBERT J.F., WATTS J.R., BONI A.L., COREY J.C.
Measured plutonium resuspension and resulting dose from agricultural operations on an old field at the Savannah river plant in the South-eastern USA in "Transuranium nuclides in the environment"
Edit. AIEA, pp (409-421), (1976)
- /NOS72/ NOSHKIN V.E.
Ecological aspects of plutonium dissemination in aquatic environments
Health Physics, Vol. 22, pp(537-549), June (1972)
- /PEN79/ PENTHREATH R.J., LOVETT M.B., HARVEY B.R., IBBET R.D.
Alpha-emitting nuclides in commercial fish species caught in the vicinity of WINDSCALE, United Kingdom, and their radiological significance to man in "Biological implications of radionuclides released from nuclear industries"
Edit. AIEA, Vol. II, pp(227-245), (1979)
- /ROM72/ ROMNEY E.M., DAVIS J.J.
Ecological aspects of plutonium dissemination in terrestrial environments
Health Physics, Vol. 22, pp(551-557), June (1972)
- /STAT78/ STATHER J.W., NENOT J.C.
Toxicité du plutonium, de l'américium et du curium
Edit. "Technique et Documentation", PARIS (1978)
- /TAY82/ TAYLOR P.J.
The impact of nuclear waste disposals to the marine environment
Research Report RR.8 - ISSN 01427199
Edit. PERG 34 Cowled Road OWFORD, March (1982)
- /UNS77/ United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation
1977 - Report to the General Assembly, with annexes
Edit.: United Nations Publications, NEW YORK (1977)
Edition française en 1978
- /UNS82/ United Nations Scientific Committee on the effects of Atomic Radiation
1982 - Report to the General Assembly, with annexes
Edit.: United Nations Publications, NEW YORK (1982)
- /WOO72/ WOODHEAD D.S.
Levels of radioactivity in the marine environment and the dose commitment to marine organisms in "radioactive contamination of the marine environment"
Symposium in SEATTLE (USA), 10-14 July (1972)
Edit. AIEA, VIENNE (1973)
- /ZER82/ ZERBIB J.C.
Communication à la Commission CASTAING - 9 juillet 1982.

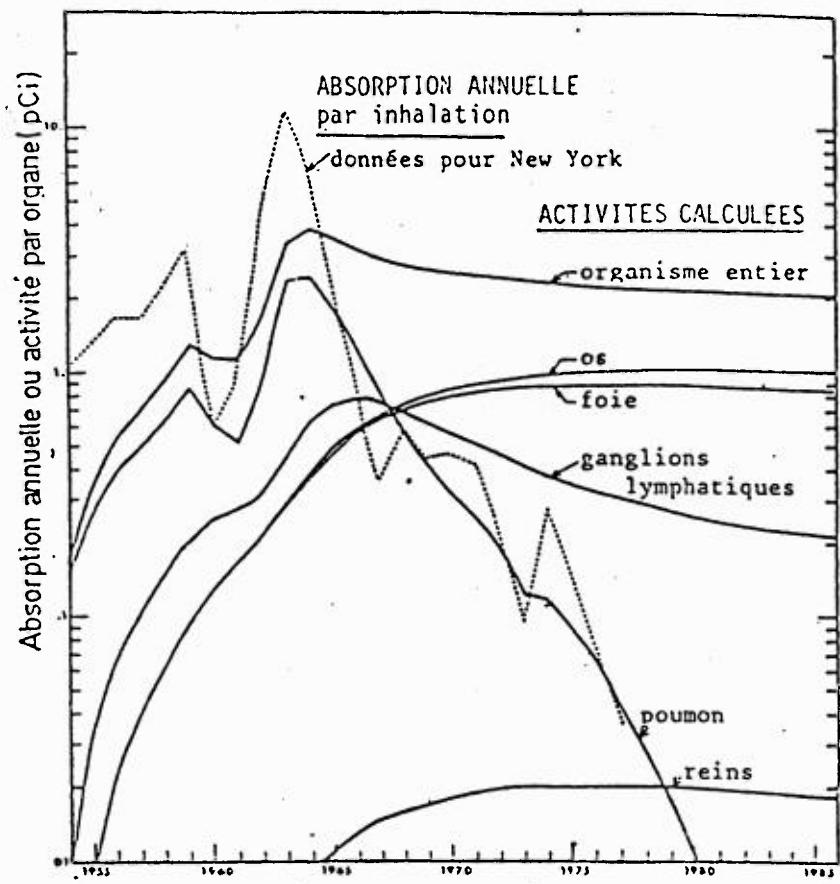


Fig.1 ABSORPTION ANNUELLE DE ^{239,240}Pu PAR INHALATION
ET CHARGES RADIOACTIVES CORRESPONDANTES CALCULEES POUR L'HOMME.

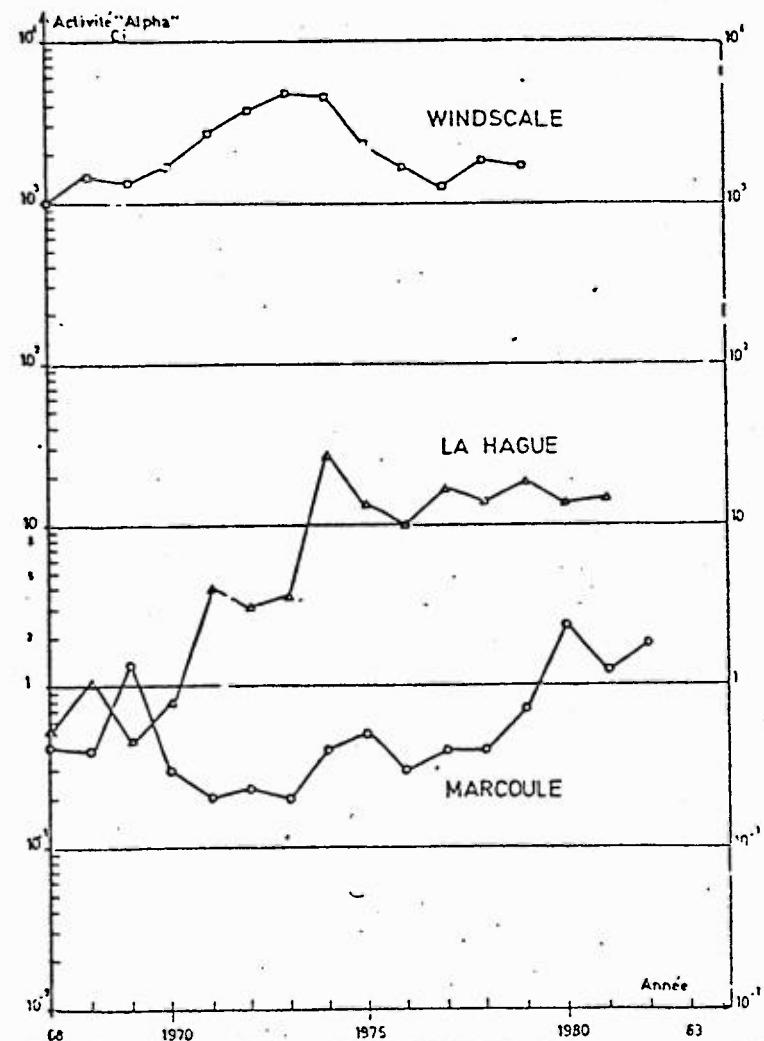


Fig.2 REJETS ANNUELS D'EFFLUENTS RADIOACTIFS ÉMETTEURS ALPHA.