

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE

INSTITUT DE PROTECTION ET DE SURETE NUCLEAIRE

DEPARTEMENT DE PROTECTION TECHNIQUE

Section d'Etudes de Protection pour les Déchets

Proposition de limite d'activité
pour la remise de matériaux dans le domaine public

A.M. CHAPUIS

Tel 4654 7233

Groupe de travail CEA/EDF

23 janvier 1985

Il n'existe pas, pour l'instant, de recommandation internationale sur des valeurs d'activité en dessous desquelles il serait possible de recycler des matériaux ou de les rendre à un usage sans restriction. Les seules valeurs existantes dans la réglementation française actuelle sont les suivantes :

a) activité massique de 2 $\mu\text{Ci}/\text{kg}$ (et 10 $\mu\text{Ci}/\text{kg}$ pour les substances radioactives solides naturelles)

b) activité totale de :

<i>Group</i> I II <u>III</u> IV	0,1 microcurie pour les radionucléides de radiotoxicité très élevée
	1 " " " " élevée
	10 " " " modérée.
	100 " " " faible.

valeurs au dessus desquelles l'exercice des activités impliquant une exposition à des rayonnements ionisants et notamment la production, le traitement, la manipulation, l'utilisation, la détention, le stockage, le transport et l'élimination des substances radioactives est soumis à un régime de déclaration ou d'autorisation préalable (Décret 66.450 du 20 juin 1966 relatif aux principes généraux de protection contre les rayonnements ionisants).

Ces valeurs ont été reprises dans un avis aux utilisateurs de radio-éléments soumis au régime d'autorisation prévu par le code de la santé publique et relatif à l'élimination des déchets radioactifs, publié au journal officiel du 6 juin 1970.

Ces recommandations ne s'appliquent absolument pas au cas des déchets produits par le démantèlement des installations nucléaires qui sont généralement caractérisés par des activités massiques très faibles mais des activités totales supérieures aux valeurs précédentes compte tenu des masses importantes des déchets produits.

De plus un certain nombre de ces matériaux présentent une valeur non négligeable. On peut donc se poser la question du devenir de ces produits et en envisager le recyclage.

Plusieurs solutions peuvent être envisagées

a) dès la sortie de l'installation les matériaux ne sont plus soumis à aucune restriction d'usage ni à aucun contrôle : il s'agit d'une banalisation.

b) la destination des matériaux est balisée suivant un circuit qui peut correspondre à différentes options comme par exemple :

- choix de la première destination : décharge, aciérie...
- choix de la première utilisation du matériau recyclé,
- réutilisation du matériau dans le domaine nucléaire.

Les limites d'activité pour chacune de ces options doivent être fixées à partir d'une étude de l'impact radiologique correspondant.

Celui-ci dépend de la nature des matériaux, de leur masse, des radionucléides susceptibles d'être présents dans les matériaux, des options choisies (banalisation, circuit balisé).

Les limites d'activité théoriques définies par cette étude doivent ensuite permettre de fixer les limites pratiques qui seront utilisés par les exploitants et qui sont établies à partir des caractéristiques des principaux radionucléides et les mesures associées.

Compte tenu de la diversité des matériaux et des modes de recyclage correspondants qui conduisent à des voies de transfert vers l'homme et des conditions d'exposition très différentes il est préférable de définir les limites par type de matériaux.

EVALUATION DES CONSEQUENCES RADIOLOGIQUES DUES AU RECYCLAGE DES ACIERS

Nous étudions ces conséquences pour un cas de référence à partir duquel nous pourrions déduire les conséquences d'autres options et les limites d'activité acceptables correspondantes.

I. Caractéristiques des ferrailles

$10^{-2} \mu\text{Ci}/\text{kg}$

Nous considérons 1000 tonnes de ferrailles en provenance d'un réacteur de puissance, contenant $10 \mu\text{Ci}$ par tonne. L'activité totale contenue dans le lot est de 10 mCi ($3,7 \cdot 10^8 \text{ Bq}$). Généralement les ferrailles ne sont pas activées mais la radioactivité se trouve située en surface. A cette activité massique correspond donc une activité surfacique. Le rapport entre la surface et la masse est variable et dépend de la nature des pièces. Il est de l'ordre de $0,15 \text{ m}^2$ par tonne pour les volutes de la pompe primaire d'un réacteur à eau sous pression, $0,2 \text{ m}^2/\text{t}$ pour les pressuriseurs, $1,6$ à $2 \text{ m}^2/\text{t}$ pour le circuit primaire, $40 \text{ m}^2/\text{t}$ pour les parois des piscines, 50 à $100 \text{ m}^2/\text{t}$ pour les caillebotis et les escaliers, $100 \text{ m}^2/\text{t}$ pour les tuyauteries. Dans un travail effectué pour la C.C.E. la valeur moyenne utilisée était de $10 \text{ m}^2/\text{t}$ /1/. Bryan évaluait l'épaisseur moyenne des aciers contaminés d'un REP à 1 cm ce qui correspond à $13 \text{ m}^2/\text{t}$ /2/. Dans le cas des aciers de l'échangeur de CHINON 3 on est en présence de tubes d'épaisseur 3 et 4 mm et des tôles de 16 et 21 mm correspondant respectivement à 42 , 32 , 8 et $6 \text{ m}^2/\text{t}$.

En prenant une valeur moyenne de $10 \text{ m}^2/\text{t}$, une activité massique moyenne de $10 \mu\text{Ci}/\text{t}$ ($10^{-2} \mu\text{Ci}/\text{kg} = 0,37 \text{ Bq}\cdot\text{g}^{-1}$) correspond à une activité surfacique moyenne de $10^{-4} \mu\text{Ci}\cdot\text{cm}^{-2}$ ($3,7 \text{ Bq}\cdot\text{cm}^{-2}$)

Les radionucléides qui peuvent se trouver sur ces pièces dépendent d'une part des émetteurs présents dans le réacteur qui varient avec la composition des matériaux du circuit primaire et le taux de rupture de gaine, d'autre part du fluide à l'origine de la contamination : fluide primaire, aérosols, effluents, produits décontaminants, etc. Cependant les mesures réalisées sur ces fluides dans les réacteurs européens et les caractéristiques des différents radionucléides montrent que les radionucléides les plus caractéristiques à prendre en compte dans l'évaluation des conséquences radiologiques ne sont pas très nombreux. Parmi ceux-ci le cobalt est, dans tous les cas observés, le radionucléide prépondérant. Le tableau 1 résume les caractéristiques de ces radionucléides.

RN	Période ans	Emission		Facteur de dose (Sv.Bq ⁻¹)*	
		γ MeV	%	inhalation	ingestion
Mn 54	0,855	0,835	100	1,7 E-9	7,3 E-10
Co 60	5,27	1,17	100	4,1 E-8	7 E-9
		1,33	100		
Zn 65	0,668	1,115	50,7	5 E-9	3,9 E-9
Sr 90	28,1			3,4 E-7	3,9 E-8
Cs 134	2	0,57	23	1,3 E-8	2 E-8
		0,605	98		
		0,796	99		
		1,15	6,4		
Cs 137	30,1	0,662	85	8,7 E-9	1,4 E-8
α	> 100	faible		~ 1,4 E-4	1 à 6 E-7

* Lorsqu'il existe plusieurs facteurs de dose selon la forme chimique sous laquelle se trouve le radionucléide, la valeur la plus élevée est retenue

II. Conditions d'exposition

L'exposition du public peut se produire avant la fusion pendant le séjour près des tas de ferrailles ou au cours de leur manipulation, pendant la fusion par inhalation des poussières dans l'aciérie, pendant l'usinage de l'acier, pendant l'utilisation des produits finis, enfin au cours des manipulations des sous-produits de l'aciérie.

II.1. Exposition externe à proximité des tas de ferrailles

Personne ne séjourne près de ces tas, l'exposition a lieu lorsque les ouvriers circulent à proximité et durant les travaux de manutention (dépôt et reprise des matériaux).

La masse de ferraille correspond à une faible fraction de la totalité des ferrailles traitées par l'aciérie en une année ; de l'ordre de 0,5 % dans le cas d'une aciérie de petite capacité. Ceci correspond à une durée de présence de 10 heures par an à proximité du tas pour les ouvriers effectuant ces travaux de manutention. Une valeur supérieure de la dose annuelle correspondante peut être obtenue en supposant que cette exposition a lieu devant un volume important de déchets sous un angle solide égal à π . Les doses correspondant aux différents radionucléides cités dans le tableau 1 sont les suivantes :

RN	Dose (μ rad)
Mn 54	40
Co 60	120
Zn 65	30
Cs 134	80
Cs 137	30

Tableau 2
Dose à proximité d'une masse importante
pour une durée d'exposition de 10 h.

II.2. Exposition interne suite à l'incorporation de radionucléides au cours d'une blessure

La pénétration de radionucléides par l'intermédiaire d'une blessure dépend de la nature de cette blessure et de la forme chimique sous laquelle se trouve le radionucléide. La manipulation à main nue est exceptionnelle, le port de gant étant obligatoire pour ce travail. Nous admettons que cet accident se produit une fois au cours de l'année, que la fraction de l'activité qui pénètre dans le corps est la même que celle qui franchit la barrière intestinale dans le cas de l'ingestion et qu'elle correspond à l'activité présente sur 100 cm² soit 10^{-2} μ Ci. Les valeurs indiquées dans le tableau 3 doivent être utilisées avec prudence compte tenu des incertitudes sur les paramètres relatifs à ce scénario.

RN	Engagement de dose correspondant à l'incorporation de 10^{-2} μ Ci
Mn 54	30 μ rem
Co 60	260 "
Zn 65	140
Sr 90	1 400
Cs 134	740
Cs 137	500
α	5 à 20 mrem

II.3. Exposition interne due à l'inhalation de poussières dans l'aciérie

Les conditions d'exposition dépendent de la répartition des radionucléides entre l'acier, les scories et les poussières. Nous supposons par la suite que cette répartition est la suivante :

- a dans le lingot
- b dans les scories
- c dans les fumées qui se dégagent

$$a + b + c = 1$$

Les valeurs de a, b et c données dans le tableau 4 correspondent aux valeurs qui ont été observées au cours de la fusion dans un four industriel de 3,6 tonnes de ferrailles en provenance de Chinon. Elles sont en accord avec des expériences qui ont eu lieu en Angleterre. Nous ne connaissons pas pour l'instant la répartition du strontium et des émetteurs α et nous supposons que l'activité se retrouve en totalité dans chacune des fractions. Il est vraisemblable que la majorité des émetteurs α se retrouveront dans les scories.

	a lingot	b scories	c poussières
Manganèse	1	10^{-3} à 10^{-2}	10^{-2} à 10^{-1}
Cobalt	1	10^{-3} à 10^{-2}	10^{-3} à 10^{-2}
Zinc	0,5 à 1	$< 10^{-2}$	10^{-1} à $5 \cdot 10^{-1}$
Césium	$< 10^{-1}$	$< 10^{-2}$	1

Tableau 4
Répartition des principaux radionucléides

Nous considérons une petite aciérie recyclant 300 000 tonnes de ferrailles par an. La quantité de scories produites est environ 30 000 tonnes et la quantité de poussières recueillies dans les systèmes de filtration 3 000 tonnes.

La quantité de poussières inhalée en un an par un travailleur de l'aciérie est au maximum de 21,6 g qui correspond à une₃ exposition de 1800 h par an dans un empoussiérement maximal de $10 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$ avec un débit respiratoire de $1,2 \text{ m}^3$ par heure.

Si toute la poussière inhalée provient de l'acier, l'activité inhalée est :

$$\frac{21,6}{3 \cdot 10^{11}} \times 10^{-2} \times a \quad (\text{Ci})$$

Si toute la poussière inhalée provient des scories, l'activité inhalée est :

$$\frac{21,6}{3.10^{10}} \times 10^{-2} \times b \quad (\text{Ci})$$

Si toute la poussière inhalée provient de la fumée, l'activité inhalée est :

$$\frac{21,6}{3.10^9} \times 10^{-2} \times c \quad (\text{Ci})$$

RN	Engagement de dose (rem)		
	a lingot	b scories	c fumée
Mn 54	$4,8 \cdot 10^{-9}$	$4,8 \cdot 10^{-11}$ à $4,8 \cdot 10^{-10}$	$4,8 \cdot 10^{-9}$ à $4,8 \cdot 10^{-8}$
Co 60	10^{-8}	10^{-10} à 10^{-9}	10^{-9}
Zn 65	$7 \cdot 10^{-9}$ à $1,5 \cdot 10^{-8}$	$< 1,5 \cdot 10^{-9}$	$1,5 \cdot 10^{-7}$ à $7 \cdot 10^{-7}$
Sr 90	$< 9 \cdot 10^{-7}$	$< 9 \cdot 10^{-6}$	$< 9 \cdot 10^{-5}$
Cs 134	$< 3,5 \cdot 10^{-9}$	$< 3,5 \cdot 10^{-9}$	$3,5 \cdot 10^{-6}$
Cs 137	$< 2,3 \cdot 10^{-9}$	$< 2,3 \cdot 10^{-9}$	$2,3 \cdot 10^{-6}$
α	$< 3,7 \cdot 10^{-4}$	$< 3,7 \cdot 10^{-3}$	$< 3,7 \cdot 10^{-2}$

II.4. Ouvriers travaillant sur l'usinage de l'acier

Ils sont soumis à l'exposition interne due à l'inhalation de poussières. L'empoussièrément est inférieur à celui de l'aciérie et conduit à des doses inférieures.

II.5. Ouvriers d'une cimenterie

Les scories obtenues dans les aciéries sont parfois utilisées pour la fabrication de ciment mais n'entrent que pour une faible part dans les matériaux manipulés dans la cimenterie. De ce fait les doses correspondantes sont inférieures à celles que nous avons calculées dans le cas de l'aciérie.

II.6. Utilisation de l'acier recyclé

L'acier recyclé peut contenir des traces de radioactivité répartie de manière homogène dans la masse. Le principal risque d'exposition correspond à l'exposition externe par les rayonnements γ . Nous avons calculé l'exposition de personnes du public dans les quatre cas suivants :

- exposition permanente 8760 h par an, à proximité d'un mobilier (armoire, radiateur,...) assimilé à un disque d'acier de 25 kg ;
- exposition 2000 h par an dans une pièce, comme une cuisine, contenant 4 appareils du même type ;
- exposition 2000 h par an dans un véhicule dont les parois sont constituées d'acier recyclé de 2 mm d'épaisseur ;
- exposition 8760 h par an dans des locaux comprenant des parties métallique à raison de 30 kg d'armatures par m³ de béton, répartis de manière homogène.

Ces quatre cas donnent des doses annuelles qui sont du même ordre de grandeur, la plus importante étant celle qui correspond au séjour à l'intérieur du véhicule et dont nous donnons les valeurs dans le tableau 6.

Pour calculer la dose correspondante nous supposons que l'activité massique moyenne de l'acier recyclé est égale au dixième de l'activité massique moyenne de la ferraille pour tenir compte du fait que les charges des fours proviennent toujours de plusieurs lots de ferraille de compositions différentes et que la totalité de l'acier présent dans les équipements ou dans les véhicules ne provient pas de la même coulée.

Le tableau 7 donne la dose annuelle à l'intérieur de l'habitable.

Radionucléide	Fraction de l'activité allant dans l'acier	Dose annuelle mrad
Mn 54	1	0,14
Co 60	1	0,57
Zn 65	0,5 à 1	0,06 à 0,12
Cs 134	< 0,1	< 0,05
Cs 137	< 0,1	< 0,007

Tableau 7

Dose annuelle à l'intérieur d'un véhicule de 2 mm d'épaisseur

II.7. Comparaison des différentes doses annuelles

Les doses précédentes ont été calculées dans le cas du recyclage de 1000 tonnes d'acier contenant 10 mCi. Si les quantités recyclées sont différentes, seules sont modifiées les doses correspondant à l'exposition près des tas de ferrailles et celles correspondant à l'inhalation de poussières qui sont proportionnelles à l'activité totale reçue par l'aciérie pendant un an donc à la masse de ferrailles recyclées. En supposant que cette quantité soit au maximum de 10 000 tonnes dans la même aciérie les doses correspondant aux différentes conditions d'exposition sont rassemblées dans le tableau suivant :

RN	blessure	exposition près tas ferraille	inhalation dans l'aciérie			exp. dans véhicule
			acier	scories	poussières	
Mn 54	3.10^{-5}	4.10^{-4}	$4,8 10^{-8}$	$4,8 10^{-10}$ à $4,8 10^{-9}$	$4,8 10^{-8}$ à $4,8.10^{-7}$	$1,4 10^{-4}$
Co 60	$2,6 10^{-4}$	$1,2 10^{-3}$	10^{-7}	10^{-9} à 10^{-8}	10^{-8}	$5,7 10^{-4}$
Zn 65	$1,4 10^{-4}$	3.10^{-4}	7.10^{-8} à $1,5.10^{-7}$	$< 1,5 10^{-8}$	$1,5 10^{-6}$ à $7 10^{-6}$	$6 10^{-5}$ à $1,2 10^{-4}$
Sr 90	$1,4 10^{-3}$		$< 9 10^{-6}$	$< 9 10^{-5}$	$< 9 10^{-4}$	
Cs 134	$7,4 10^{-4}$	8.10^{-4}	$< 3,5 10^{-8}$	$< 3,5 10^{-8}$	$3,5 10^{-5}$	$< 5.10^{-5}$
Cs 137	$5 10^{-4}$	3.10^{-4}	$< 2,3 10^{-8}$	$< 2,3 10^{-8}$	$2,3 10^{-5}$	$< 7 10^{-6}$
α	5.10^{-3} à 2.10^{-2}		$< 3,7 10^{-3}$	$< 3,7 10^{-1}$		

Tableau 8

Doses annuelles ou engagement de dose correspondant au recyclage de 10 000 t d'acier contenant 100 mCi (rem)

On constate que les doses les plus importantes sont dues, pour les émetteurs β - γ , à l'exposition externe du cobalt 60 et sont, au maximum de l'ordre du mrem par an. Compte tenu des hypothèses généralement pessimistes retenues pour le calcul des doses on peut estimer que la valeur utilisée pour le calcul, $10 \mu\text{Ci}$ par tonne, conduit à des doses acceptables et pourrait être retenue comme limite d'activité massique pour le recyclage des aciers après fusion.

Dans le cas des émetteurs α il serait souhaitable de mieux connaître leur répartition dans les différents produits. On peut cependant estimer qu'une limite 100 fois inférieure à celle du cobalt 60 devrait conduire à des doses acceptables. Dans le cas des déchets et des effluents produits par un réacteur de puissance le rapport entre les activités des émetteurs α et celles des émetteurs β est de l'ordre de ou inférieur à 10^{-3} , la limite imposée pour les émetteurs β conduirait donc à une dose négligeable due aux émetteurs α .

$10^{-3} \mu\text{Ci}/\text{kg}$

II.8. Accumulation des radionucléides à vie longue

On peut s'interroger sur l'accumulation éventuelle dans les aciers des radionucléides à vie longue si cette pratique se poursuit de nombreuses années. En supposant que chaque année l'aciérie reçoive des ferrailles en provenance de réacteurs démantelés et contenant une activité A_i du radionucléide i , on peut calculer quelle est l'activité qui se trouve ajoutée du fait du recyclage des aciers. On obtient une valeur maximale en supposant que le recyclage des matériaux se fait dans la même aciérie.

Soit θ la durée de vie moyenne du matériel
 f la fraction de ce matériel qui est recyclé
 a la fraction du radionucléide i qui se retrouve dans le lingot au moment de la fusion

A saturation l'activité qui pénètre dans l'aciérie chaque année est
 $A_i (1 + a_i f e^{-\lambda_i \theta} + a_i^2 f^2 e^{-2\lambda_i \theta} + \dots) = A_i K_i$

Les engagements de dose dans l'aciérie sont proportionnels à $A_i K_i$. Le tableau 9 donne les valeurs de K_i pour différents radionucléides et différentes valeurs des paramètres. Les valeurs calculées pour les émetteurs alpha à vie longue peuvent s'appliquer par exemple, au cas du niobium 94 ou du nickel 59. On constate que, même dans le cas le plus pessimiste d'un taux de recyclage de 60 % vers la même aciérie, le facteur K est égal à 2,5, ce qui ne change pas l'ordre de grandeur des doses calculées précédemment.

En ce qui concerne l'activité présente dans l'acier il n'est plus possible d'admettre qu'à long terme les aciers provenant des divers recyclages successifs se retrouvent dans les mêmes coulées que l'acier en provenance des réacteurs, de ce fait les valeurs de K pour les différents radionucléides sont très voisines de 1.

RN	Période (ans)	a	f	θ (ans)	K
Mn 54	0,855	1	0,4	10	1,00
Co 60	5,27	1	0,4	10	1,12
		1	0,5	5	1,25
Cs 137	30,1	< 0,1	0,4	10	< 1,03
α	∞	1	0,4	10	1,66
		1	0,6	10	2,5
		0,1	0,6	10	1,06

Tableau 9
 Accumulation des radionucléides