

I.R.D.I.
D.E.R.D.C.A. - D.G.R.
SERVICE DE L'ATELIER PILOTE

=====

NOUVELLE CELLULE D'ANALYSES
DE PLUTONIUM IRRADIE

=====

Auteurs : Claude LINGER - Joël LE BOUELLEC

COMMISSION DES COMMUNAUTES EUROPEENNES
"Laboratoires Chauds et Télémanipulation"

21 - 22 mai 1986 à BRASIMONE

I - INTRODUCTION

Mis en service en 1962, l'Atelier Pilote de Marcoule, complément indispensable des unités de Recherche et Développement du Département de Génie Radioactif, a pour mission d'expérimenter les procédés et les appareillages destinés aux usines de Retraitement de combustibles irradiés.

Pour que les résultats soient obtenus dans des conditions représentatives de celles des usines, en durée, en capacité et en niveau d'activité, il procède à des campagnes de démonstration réalisées à une échelle semi-industrielle et portant sur des combustibles divers : métalliques, à base d'uranium naturel à l'origine, puis alliages MTR (U Al, Pu Al) et enfin oxydes en général et plus particulièrement des réacteurs rapides depuis 1973.

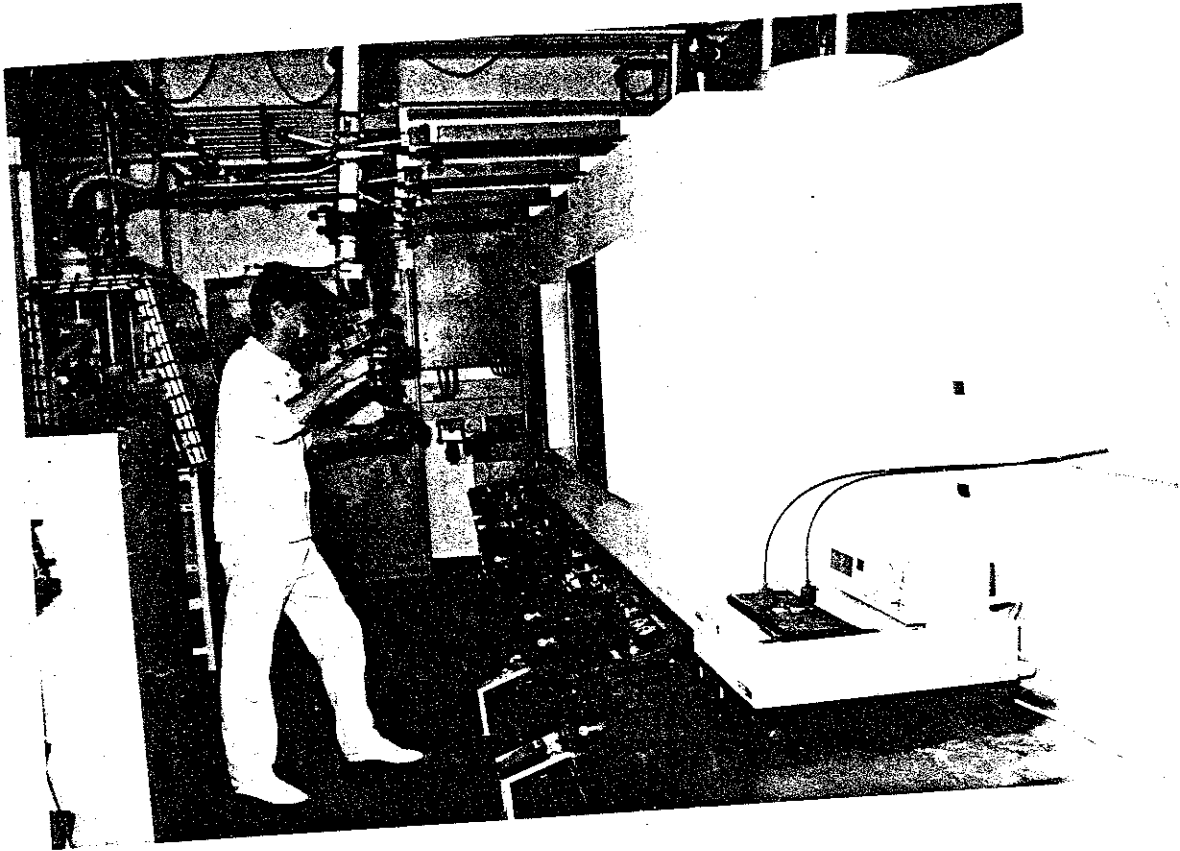
Ainsi, après le retraitement des combustibles Fortissimo et KNK de 1974 à 1976, c'est sur le combustible coeur du réacteur Phénix que les opérations ont porté à partir de 1977 : 2,6 t à 26 % d'²³⁵U et 6,6 t à 25 % de Pu.

En milieu d'année 1983, l'Atelier a été mis à l'arrêt pour permettre la réalisation de l'opération de refonte qui avait été lancée en 1978 et qui comportait une extension (nouveau bâtiment abritant la tête du procédé) et une rénovation des installations existantes, dans le but :

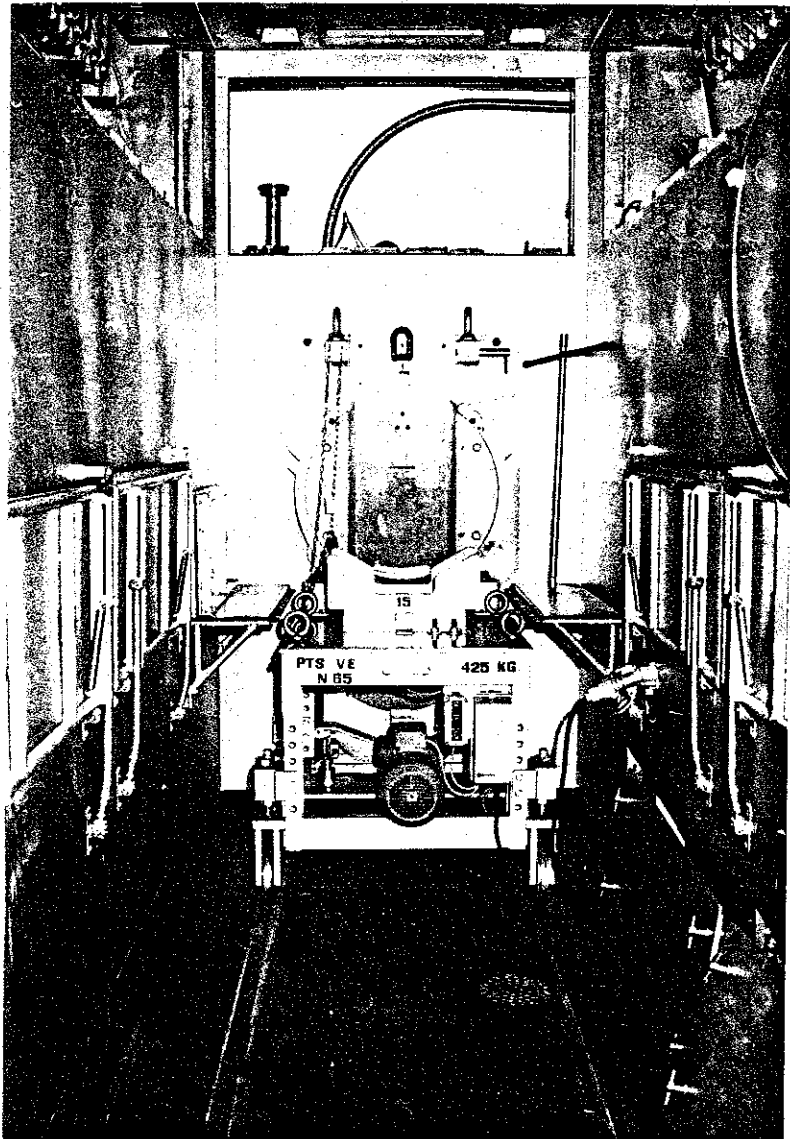
- . d'accroître les moyens en matière de R et D
- . d'augmenter la capacité (5 t/an au lieu de 2,3 t/an) de traitement en l'étendant à d'autres combustibles que ceux de Phénix
- . d'améliorer la sécurité de fonctionnement
- . de conditionner un maximum de déchets pour qu'ils soient directement stockables.

C'est dans le cadre de cette opération qu'a été réalisé un nouveau laboratoire d'analyses sur solutions de moyenne activité $\beta \gamma$ pour le contrôle de fonctionnement de l'atelier et pour le développement de techniques nouvelles.

L'objectif était de disposer d'un ensemble permettant de travailler sur des solutions concentrées de plutonium (jusqu'ici 250 gl^{-1}), en respectant les nouvelles normes en matière d'irradiation ($0,25 \text{ m Rem h}^{-1}$) au poste de travail.



VUE GENERALE



SAS D'INTERVENTION

II - DESCRIPTION DES INSTALLATIONS

Ce nouveau laboratoire de moyenne activité est réservé au contrôle analytique des échantillons issus des deuxièmes cycles U et Pu et du troisième cycle Pu. Au centre, une enceinte blindée en forme de "U", comporte neuf postes de travail ; la partie centrale du "U" est un sas d'intervention. En périphérie, sont implantées cinq boîtes à gants.

II.1 - L'ENCEINTE BLINDEE

Des plaques de fonte de 90 mm d'épaisseur (équivalent à 50 mm de plomb), constituent le blindage des parois latérales et du dessus des cellules. L'intérieur de l'enceinte est constitué d'une double paroi en acier. Les cellules, au nombre de trois, sont composées d'une coque de confinement étanche, en acier inoxydable. La vision se fait à travers des hublots de verre au plomb (trois par cellule soit un par poste de travail). Deux télémanipulateurs HOBSON M 7 équipent chaque poste de travail ; leur qualité d'utilisation est remarquable et leur remplacement simple et adapté du fait de la faible irradiation émise, à la suite de chaque rinçage complet des confinements. Les trois cellules communiquent entre elles par des ouvertures de 250 mm de diamètre (obturateurs LA CALHENE). La cellule centrale est reliée aux unités de traitement par un circuit pneumatique pour la réception des échantillons à analyser. Elle est équipée d'un sas de sortie de déchets par l'intermédiaire de châteaux PADIRAC. L'introduction de matériel peut se faire de trois manières :

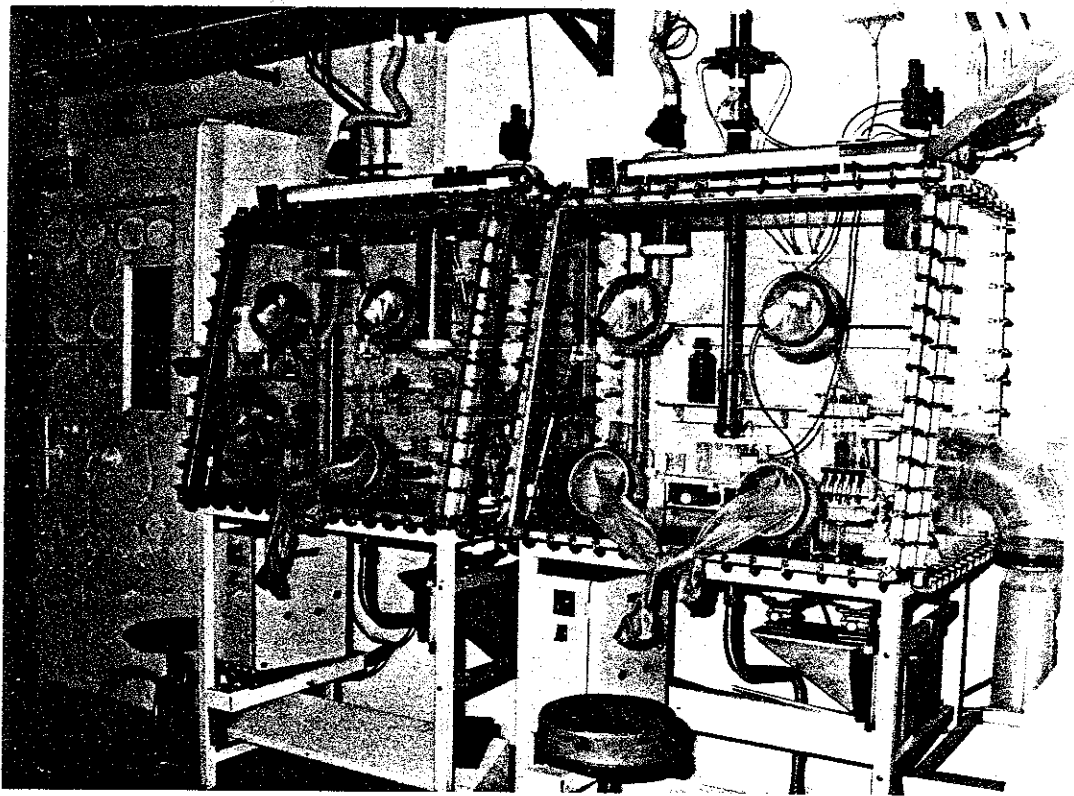
- . par manche de vinyle de 250 mm,
- . par le PADIRAC lors de l'introduction d'une poubelle neuve (diamètre 250 mm),
- . par des tubes d'introduction (diamètre 50 mm) type sas.

Les effluents liquides s'écoulent en gravitant vers une cuve de haute activité. La charge au sol est de dix tonnes par mètre carré.

II.2 - LES BOITES A GANTS PERIPHERIQUES

Au nombre de cinq, elles sont reliées à l'enceinte blindée par un

/...



BOITES A GANTS

transport pneumatique indépendant du système général.

Les panneaux sont en PMCM et les fonds en acier inoxydable. Elles ne reçoivent que des solutions diluées de l'enceinte et celles du troisième cycle.

III - EQUIPEMENT

III.1 - LES ENCEINTES

L'enceinte n°1 a pour fonctions analytiques la pesée, la densimétrie, la potentiométrie et la spectrophotométrie à fibres optiques que nous présenterons par la suite et qui constitue une nouveauté technologique.

L'enceinte n°2 englobe la centrifugation, la filtration, les dilutions et la potentiométrie.

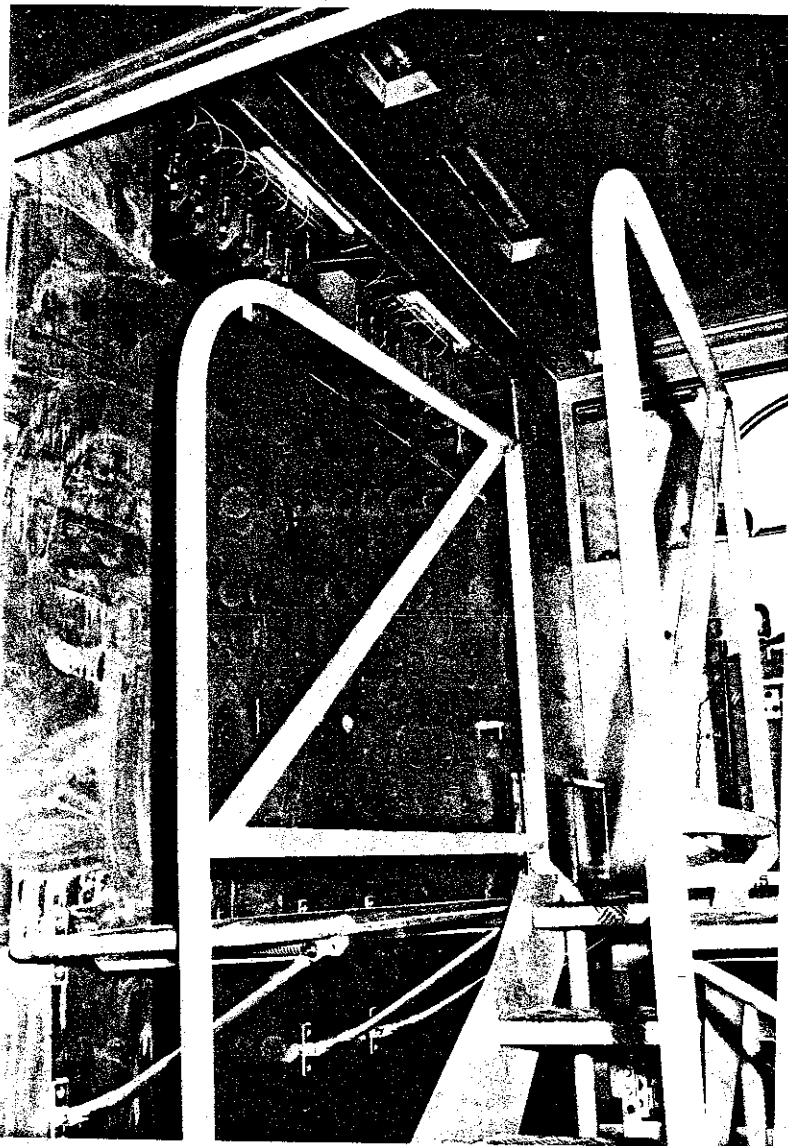
L'enceinte n°3 est la cellule de réception, stockage et distribution d'échantillons. C'est également la cellule de sortie des déchets solides. Les échantillons à analyser sont transférés : par circuit pneumatique vers les boîtes à gants du laboratoire, par télémanipulateur vers les enceintes n°1 et n°2, au travers des passages munis d'obturateurs.

On y trouve également un bouche et débouche curseurs, un bouche cruchons et un broyeur de cruchons et curseurs. Par ailleurs, elle renferme un scintillomètre de contrôle d'activité des cruchons.

III.2 - LES BOITES A GANTS

Elles contiennent toutes des réactifs en petites quantités et du matériel courant de laboratoire et sont utilisées comme indiqué ci-après :

- . n°1 : la spectrophotométrie à double faisceau et monofaisceau avec fibres optiques,
- . n°2 : (reliée à la boîte n°1 par un tunnel) préparation des échantillons pour les mesures optiques,
- . n°3 : préparation des échantillons et comptages γ ,
- . n°4 : mesures d'acidité, de basicité et de potentiométrie,
- . n°5 : (reliée à la boîte n°4 par un tunnel) mesures potentiométriques, extractions par solvant ainsi que séparations par échangeurs d'ions.



SAS D'INTERVENTION :

Introduction des réactifs liquides
de faible consommation par pistons doseurs

III.3 - APPAREILLAGE EXTERIEUR

Extérieurs à l'enceinte, les appareils suivants sont installés :

- spectrophotomètre monofaisceau
- spectrophotomètre double faisceau
- densimètre
- compteur γ
- potentiomètre.

A l'intérieur des cellules ou des boîtes à gants, se trouvent les sondes, les cellules de mesure ou électrodes, les puits optiques pour la spectrophotométrie.

Les câbles de raccordement ainsi que les fibres optiques, traversent les parois par des passages étanches à presse-étoupe.

III.4 - LES PRODUITS CHIMIQUES

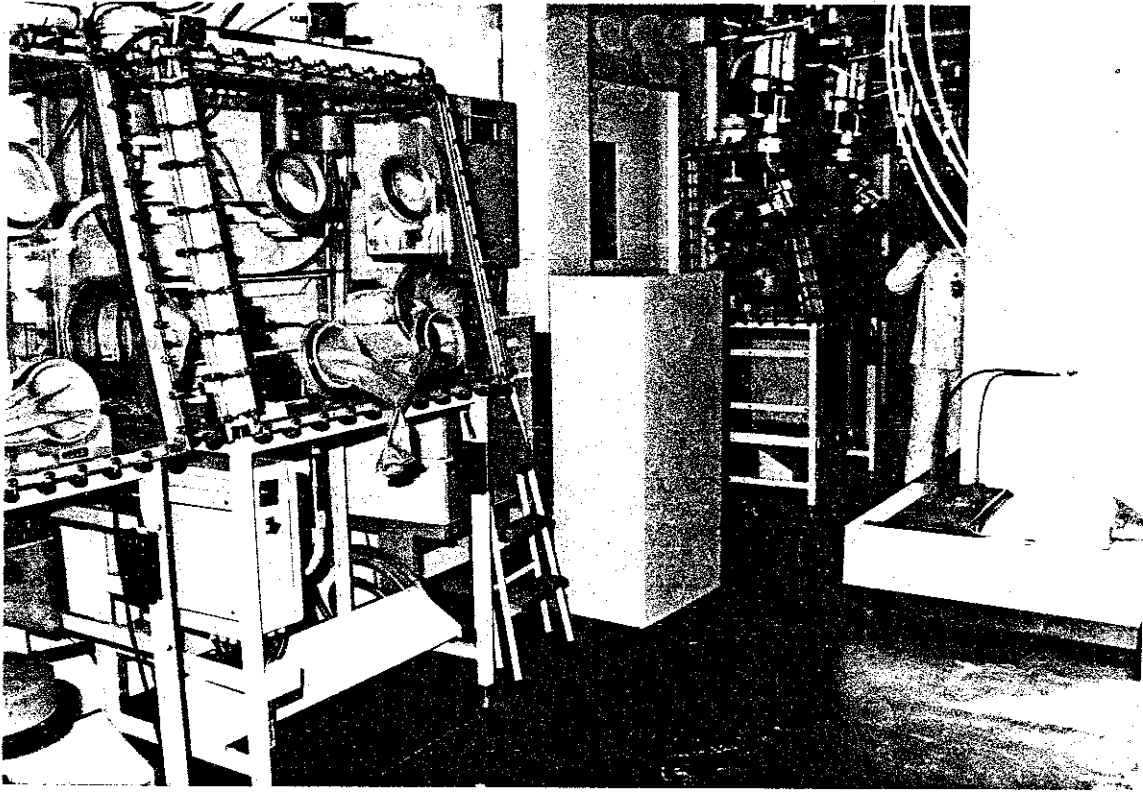
Les réactifs liquides de forte consommation sont stockés dans dix cuves de vingt litres, en acier inoxydable, disposées au dessus du sas d'entrée du laboratoire. L'alimentation de l'enceinte blindée et des boîtes à gants est gravitationnelle.

Les réactifs liquides de faible consommation sont mis en bouteilles de polyéthylène de un à deux litres, placées soit en charge au dessus des boîtes à gants dans un bac de rétention en P.V.C., soit à l'intérieur du sas d'intervention de l'enceinte blindée. Solidaires d'un piston doseur à commande électrique, des quantités connues et précises de réactifs sont injectées à l'intérieur des boîtes blindées.

IV - SECURITE

IV.1 - INCENDIE

Deux détecteurs sont placés au plafond du laboratoire. Une détection incendie propre à chaque boîte à gants et à la gaine de ventilation de reprise de la chaîne blindée, complète l'installation ; il faut mentionner aussi les extincteurs à poudre et CO_2 , les systèmes coupe-feu sur le circuit de ventilation et la couverture anti-flamme, les alarmes.



SPECTROPHOTOMETRIE A DISTANCE
AVEC FIBRES OPTIQUES

IV.2 - ELECTRICITE

Le laboratoire est alimenté en 220 V normal et stabilisé à partir d'armoire avec disjoncteurs. Les prises sont regroupées par boîtes. Le pont roulant possède son boîtier disjoncteur. Une alimentation 380 V sert pour l'alimentation de la table roulante du FADIRAC et éventuellement pour le branchement d'un poste à souder à l'arc.

IV.3 - DOUCHES

Une douche oculaire et un poste de douche d'urgence sont installés.

V - RADIOPROTECTION

Le Service de Protection contre les Radiations contrôle en permanence l'atmosphère du laboratoire par des prises d'aspiration EAR.

Un contrôle manuel de contamination peut être effectué à tout moment par un CMAPT α ou un intégrateur portatif α β γ IPAB.

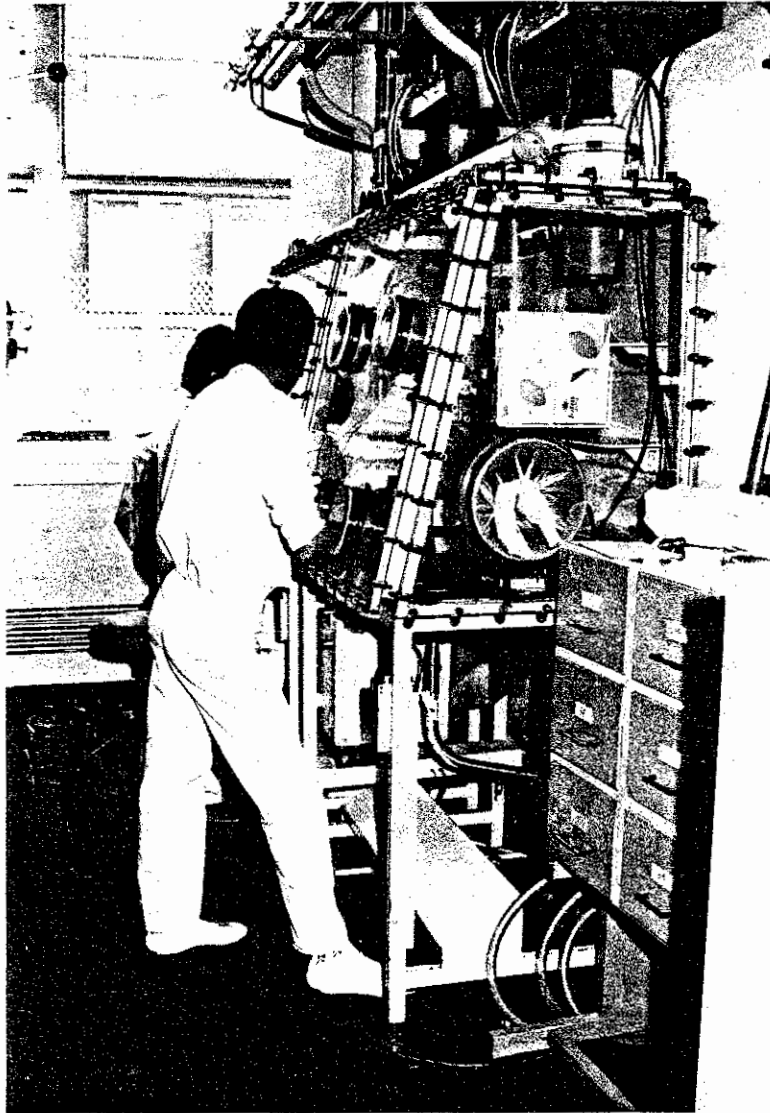
Une mesure permanente des émissions γ est faite dans le sas central de l'enceinte blindée.

VI - DEVELOPPEMENT TECHNOLOGIQUE : LA SPECTROPHOTOMETRIE A DISTANCE AVEC FIBRES OPTIQUES

L'utilisation de fibres optiques pour les analyses spectrophotométriques à distance en enceintes blindées, a pris un grand essor.

Le développement de coupleurs optiques a permis de banaliser l'emploi des spectrophotomètres pour les mesures en milieu radioactif. Nous avons généralisé l'adaptation de dispositifs de couplage optique à différents spectrophotomètres et actuellement, sont déjà équipés : CARY 14, BECKMAN 5240 et 5270, HEWLETT PACKARD 8450 et 8451, VARIAN 2300, SAFAS 170 et 310.

Les composants caractéristiques d'un ensemble de spectrophotométrie à distance sont les suivants : système analytique émetteur-récepteur de lumière, c'est le spectrophotomètre ; une ou deux paires de fibres optiques avec passage de cloisons pour le transfert des photons ; une cellule de mesure ou cuve optique à l'intérieur de l'enceinte blindée.



PREPARATION DES ECHANTILLONS POUR
LA SPECTROPHOTOMETRIE

Pour ce laboratoire, il a été décidé d'utiliser deux spectrophotomètres, l'un monofaisceau SAFAS 310 et l'autre bifaisceau SAFAS 170, susceptible de travailler indifféremment avec la cellule n°1 de l'enceinte blindée, ou avec la boîte à gants n°1. Dans la première citée, est placé un porte-cuves télémanipulable, dans la boîte à gants, se trouvent deux portes-cuves. De l'enceinte blindée, deux paires de fibres assurent la liaison avec un spectrophotomètre afin d'effectuer une mesure différentielle, chaque fibre ayant une longueur de dix-huit mètres ; de la boîte à gants sortent six paires de fibres afin de réaliser des mesures avec deux spectrophotomètres à la fois, la longueur de chaque fibre est de douze mètres. Avec un tel ensemble, toutes les combinaisons sont possibles, y compris une mesure en enceinte blindée par rapport à une référence en boîte à gants.

VI.1 - APPAREILLAGE

- spectrophotomètre SAFAS 310

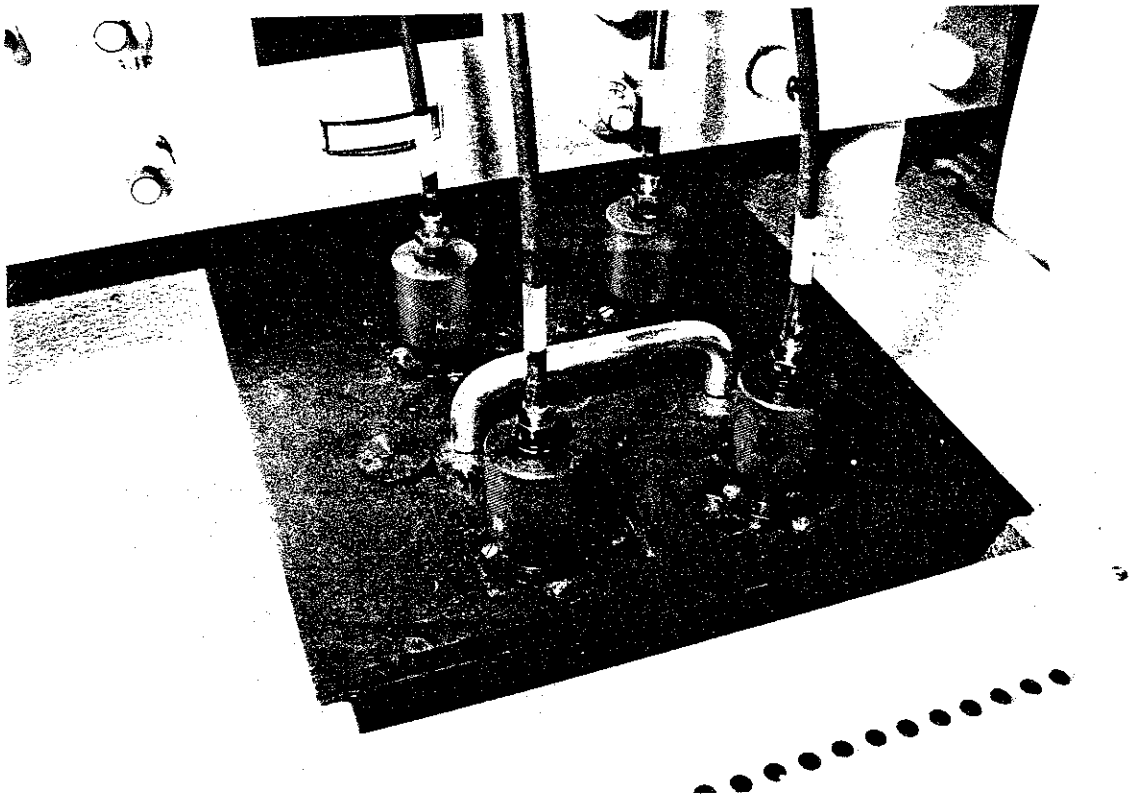
C'est un monofaisceau dont le domaine spectral d'utilisation est de 310 à 980 nanomètres. Il est équipé d'une source quartz-iode, de deux détecteurs : un phototube pour les mesures entre 310 et 650 nm et une photodiode pour le proche infra-rouge, d'un monochromateur à réseau par réflexion, de deux fentes fixes assurant une résolution de quatre nanomètres. Il a été choisi pour son bon rapport qualité-prix et pour l'accessibilité à tous ses organes. De plus, il présente un puits optique de grande dimension ce qui est un avantage pour la mise en place d'un coupleur optique pour fibres.

- spectrophotomètre SAFAS 170

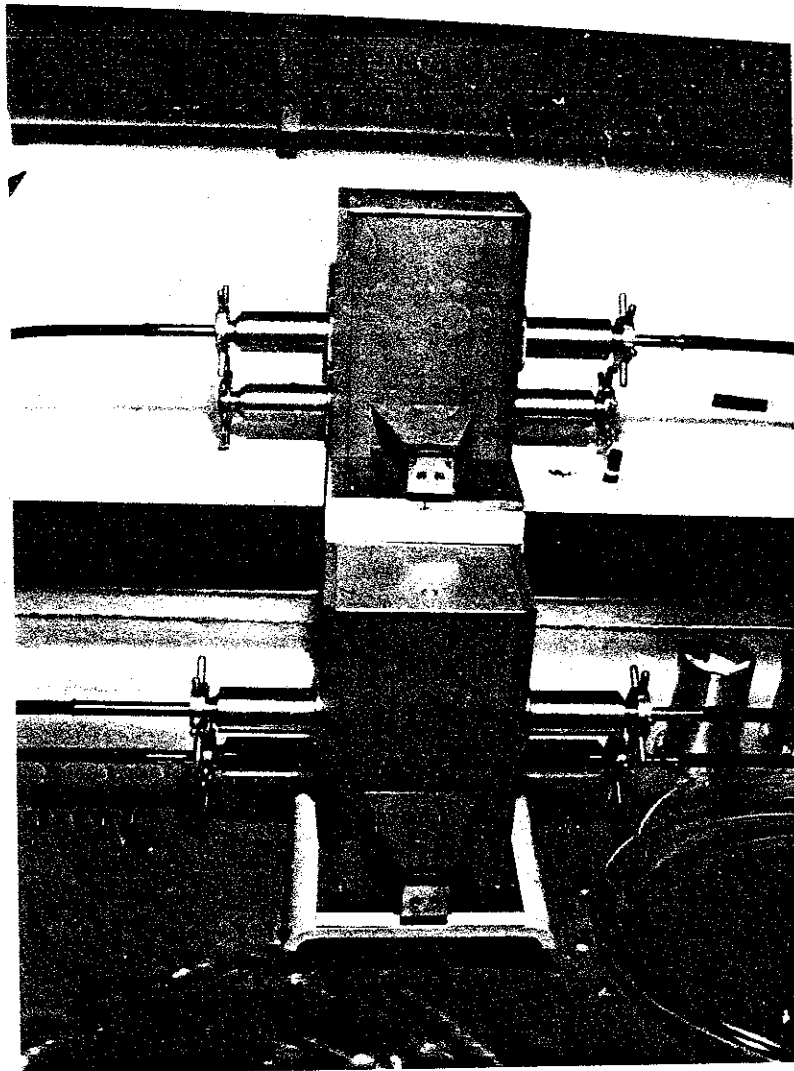
C'est un appareil pour l'ultra-violet, le visible et le proche infra-rouge à double faisceau différentiel. Sa plage spectrale est de 180 à 1000 nanomètres.

Il comporte :

- . deux sources, une lampe tungstène, une lampe au Deutérium,
- . un monochromateur à réseau à doubles fentes symétriques,
- . deux fentes variables permettant le choix d'une bande passante pouvant varier entre 0,2 et 200 nm par réglage symétrique et progressif,
- . un dispositif à double faisceau permettant l'exploitation automatique de la plage spectrale,
- . un photomultiplicateur multi-alcalin à plage spectrale étendue.



COUPLEUR OPTIQUE



CELLULES DE MESURE

- coupleur optique

Le principe est de renvoyer le faisceau monochromatisé à l'extérieur du spectrophotomètre par l'intermédiaire d'une fibre optique et de reprendre le faisceau après absorption dans l'échantillon par une autre fibre afin de mesurer l'atténuation.

Il est composé d'un statif, optiquement rectifié, fixé sur le banc optique du spectrophotomètre. Le faisceau monochromatisé rectangulaire est focalisé au moyen d'un miroir sphérique sur l'embout cylindrique de la fibre de silice. Le faisceau, après absorption, est rendu parallèle par un jeu de lentilles et renvoyé au moyen d'un miroir placé sur le détecteur. Les miroirs sont montés sur un système à charnière et ajustés par une butée à bille solidaire d'une tige avec ressort de rappel. Il est simple, avec ce système, d'avoir un maximum d'énergie lumineuse. Les fibres optiques sont solidaires de canons mobiles permettant une focalisation optimale.

- fibres optiques

Ce sont des fibres QSF 1000 monobrin en silice de un millimètre de diamètre, gainées de silicone. Elles ont leurs extrémités fracturées au diamant. Les embouts sont normalisés et compatibles avec tous coupleurs mis en oeuvre pour les spectrophotomètres. Les passages de cloison sont des guides en acier inoxydable collés sur la fibre elle-même et assurent les passages au moyen de presse-étoupes. Un triple gainage thermorétractable, semi-réticulé, en polyoléfine irradiée, de bonne résistance sous rayonnement, assure la protection des fibres. L'atténuation due aux fibres est négligeable : une vingtaine de décibels au kilomètre.

- cellule de mesure

Un statif en acier inoxydable et polychlorure de vinyle gris, susceptible d'être posé ou accroché sur une paroi, supporte les quatre embouts femelles d'alignement optique des fibres. La mise en place des fibres peut être manuelle ou télémanipulée. Un tiroir en polychlorure de vinyle permet de placer correctement les cuves mesure et référence (parcours optique de quarante millimètres maximum).

VI.2 - RESULTATS OBTENUS

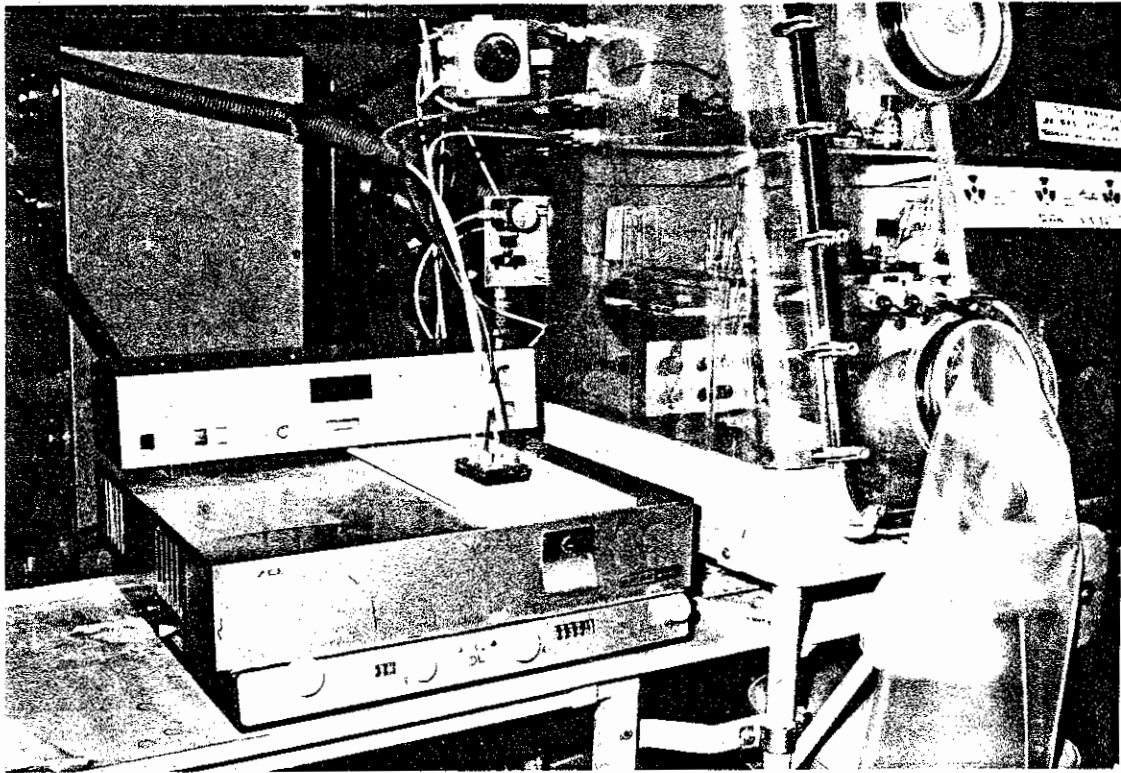
- SAFAS 170 - solution étalon de plutonium VI - courbes n°1 et 2

Après réglage optique de l'ensemble coupleur-fibres, l'absorbance de :

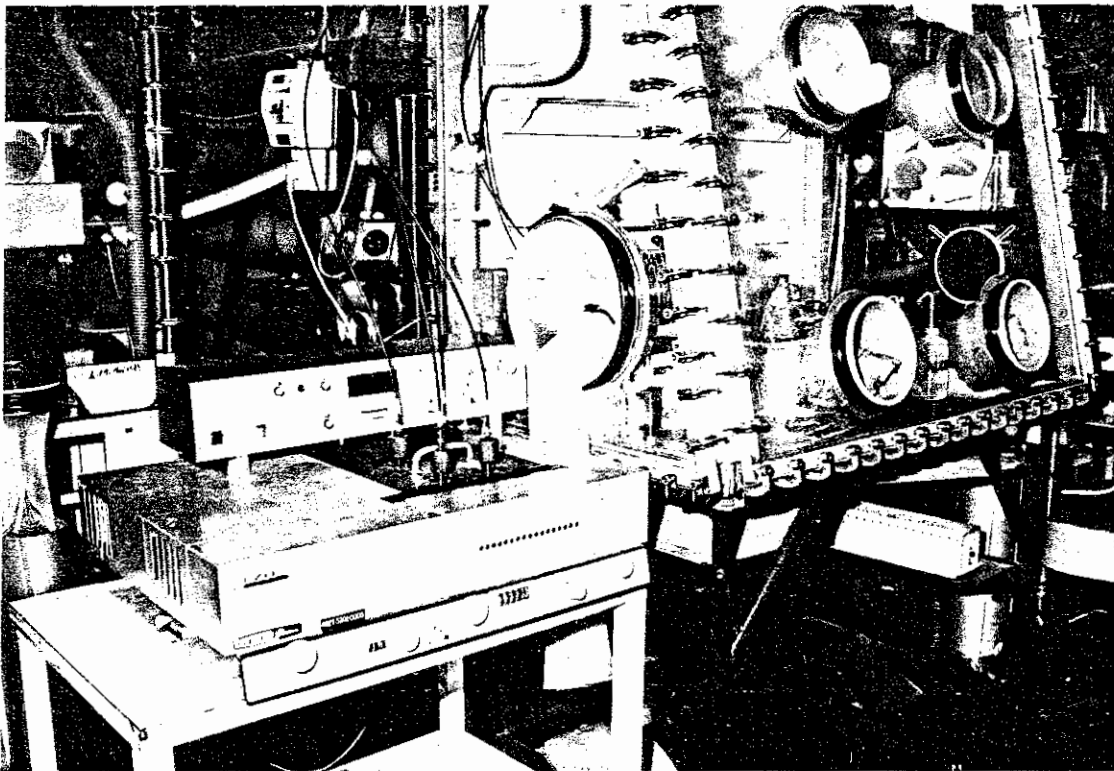
- la voie de référence est de 0,8 à 500 nm et de 0,953 à 1000 nm

- la voie mesure est de 0,87 à 500 nm et de 0,976 à 1000 nm.

/...



SAFAS 170 EQUIPE D'UNE CUVE A CIRCULATION



SAFAS 170 EQUIPE DE FIBRES OPTIQUES

Le spectrophotomètre est couplé avec l'ensemble de mesure en boîte à gants ; le réglage fin du spectrophotomètre est réalisé à 831 nanomètres avec les conditions de réglage citées ci-après :

enregistrement : $0,1 \text{ nm} - \text{nm}^{-1}$

fente : 10

vitesse de défilement du réseau : $10 \text{ nm} - \text{min}^{-1}$

expansion : 1 ou 2 selon les mesures.

La variation d'absorbance de 815 à 851 nanomètres est de 6 millièmes d'unité.

Les mêmes solutions de plutonium ont été spectrophotométrées, en même temps dans une autre boîte à gants, d'un ancien laboratoire, munie d'un système à circulation de liquide relié à un autre SAFAS 170.

Les paramètres sont bien entendu identiques pour les deux appareils.

Les dilutions sont faites à partir de l'étalon Pu VI = $1,008 \text{ g} - \text{l}^{-1}$.

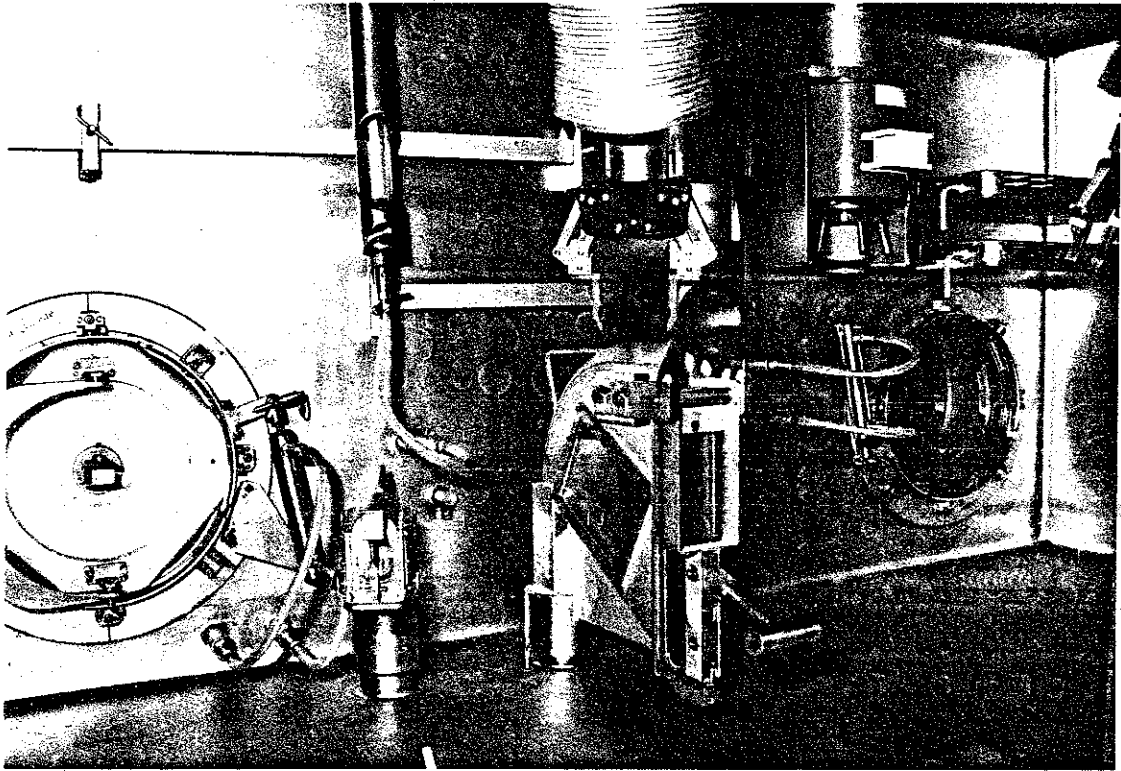
Prise d'échantillon ml dans 20 ml	Hauteur de pic (mm)		Densité optique	
	cuve à circulation	Fibres optiques	cuve à circulation	Fibres optiques
1	44	48	0,176	0,192
2	96	97	0,384	0,398
3	141	142	0,564	0,568
4	182	183	0,728	0,732

La résolution à mi-hauteur de pic est de 0,3 nm.

- SAFAS 310 - dosage du fer - courbe n°3

Pour un réglage optimum, l'absorbance de l'ensemble optique est de 0,9 à 500 nm. Le réglage fin du spectrophotomètre est fait à une longueur d'onde de 505 nm. Les mesures sont faites en cuve de 10 nm. Les solutions sont préparées en fiole de 25 ml à partir d'un étalon de fer de $36 \text{ mg} - \text{l}^{-1}$.

On peut conclure, pour ces deux exemples, que l'installation d'un coupleur à fibres optiques n'entraîne aucune diminution notable des performances de résolution optique.



INTERIEUR D'UNE ENCEINTE BLINDEE

VI.3 - EXTENSION

Avec une telle installation : puits optiques - cellules de mesure et fibres optiques, une diversité de spectrophotomètres peut être installée. Il est à noter que pour le VARIAN 2300, l'absorbance sur la voie mesure est de 1,4 (14 décibels) et sur la voie référence de 1,402 ; pour le CARY 14, les absorbances respectives sont de 1,75 ; pour le HEWLETT PACKARD 8451, monovoie, la densité optique est de 0,85 ; pour chacune des quatre voies du HEWLETT PACKARD 8450, la densité optique varie entre 1,2 et 1,35.

VII - REFLEXION

Ainsi conçu, ce Laboratoire de Moyenne Activité répond aux besoins nouveaux créés par le contexte Retraitement des rapides. Ne devant travailler que sur des solutions de plutonium, un certain nombre de "garde-fous" sont prévus pour interdire l'introduction de solution présentant une concentration trop élevée en produits de fission. La sécurité est telle que les nouvelles normes en matières de sécurité sont respectées.

Il bénéficie d'un équipement bien adapté aux demandes analytiques de l'Exploitation de l'Atelier et utilise les dernières commodités que nous avons mises en oeuvre. L'emploi de fibres optiques, par exemple, permet le confinement intégral des solutions à spectrophotométrer, tout en conservant une qualité de résultat identique à celle requise dans les laboratoires conventionnels. L'évolution des techniques n'entrave pas la liberté d'adapter, en fonction des demandes, les appareils de haute gamme, au système optique en place et pour lesquels nous sommes en mesure d'adapter une technologie appropriée.

=====

PLUTONIUM VI

SAFAS 170 avec fibres optiques

ETALON $1,008\text{gl}^{-1}$

Exp = 1

Fente = 10

$V\lambda = 10\text{nm}\cdot\text{min}^{-1}$

$V_e = 0,1\text{nm}\cdot\text{min}^{-1}$

DGR.SAP.ANT.LABO.

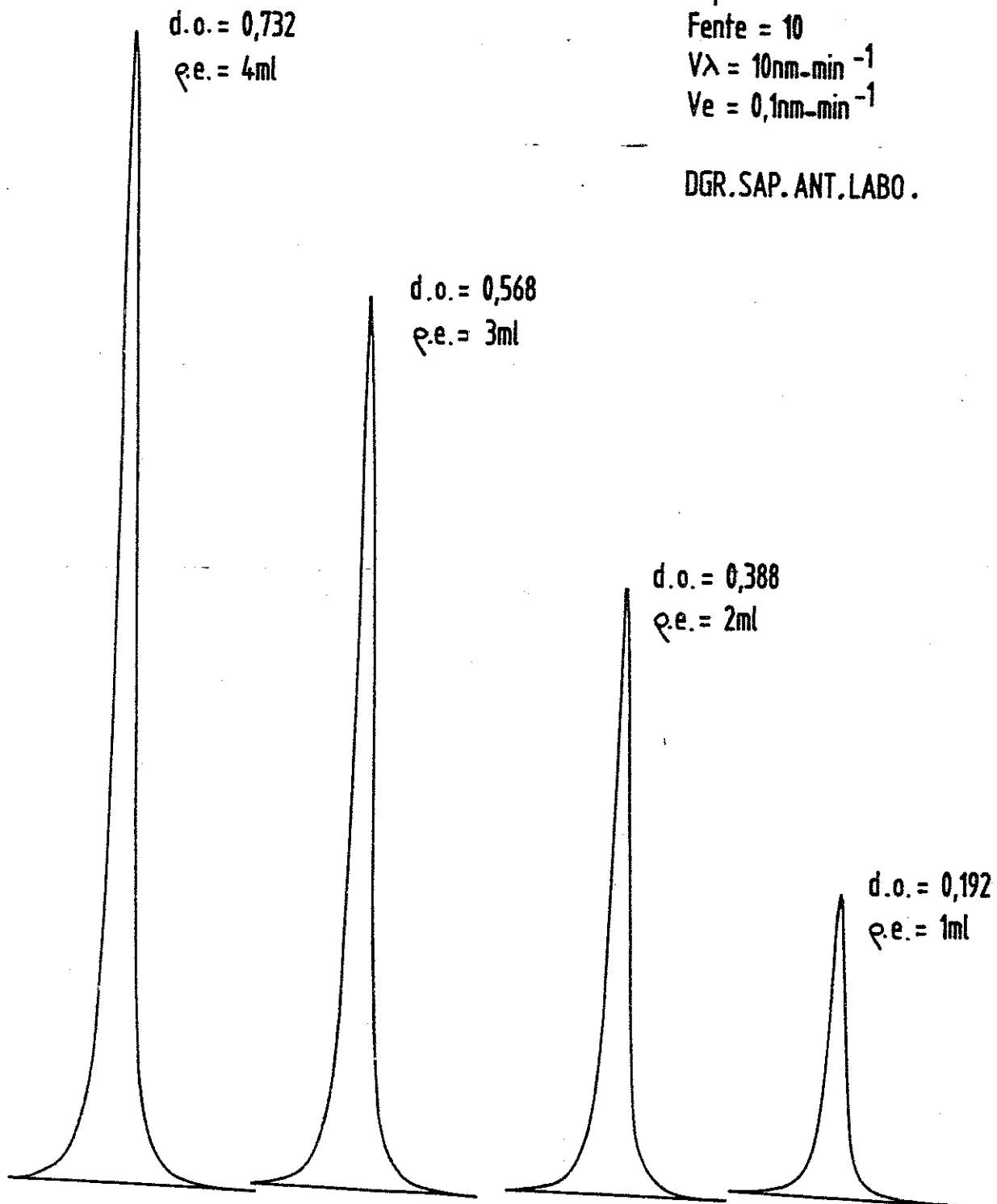


Figure - 1

PLUTONIUM VI

SAFAS 170 avec cuve à circulation

ETALON $1,008\text{gl}^{-1}$

Exp = 1

Fente = 10

$V = 10\text{nm}\cdot\text{min}^{-1}$

$V_e = 0,1\text{nm}\cdot\text{min}^{-1}$

DGR.SAP.ANT.LABO.

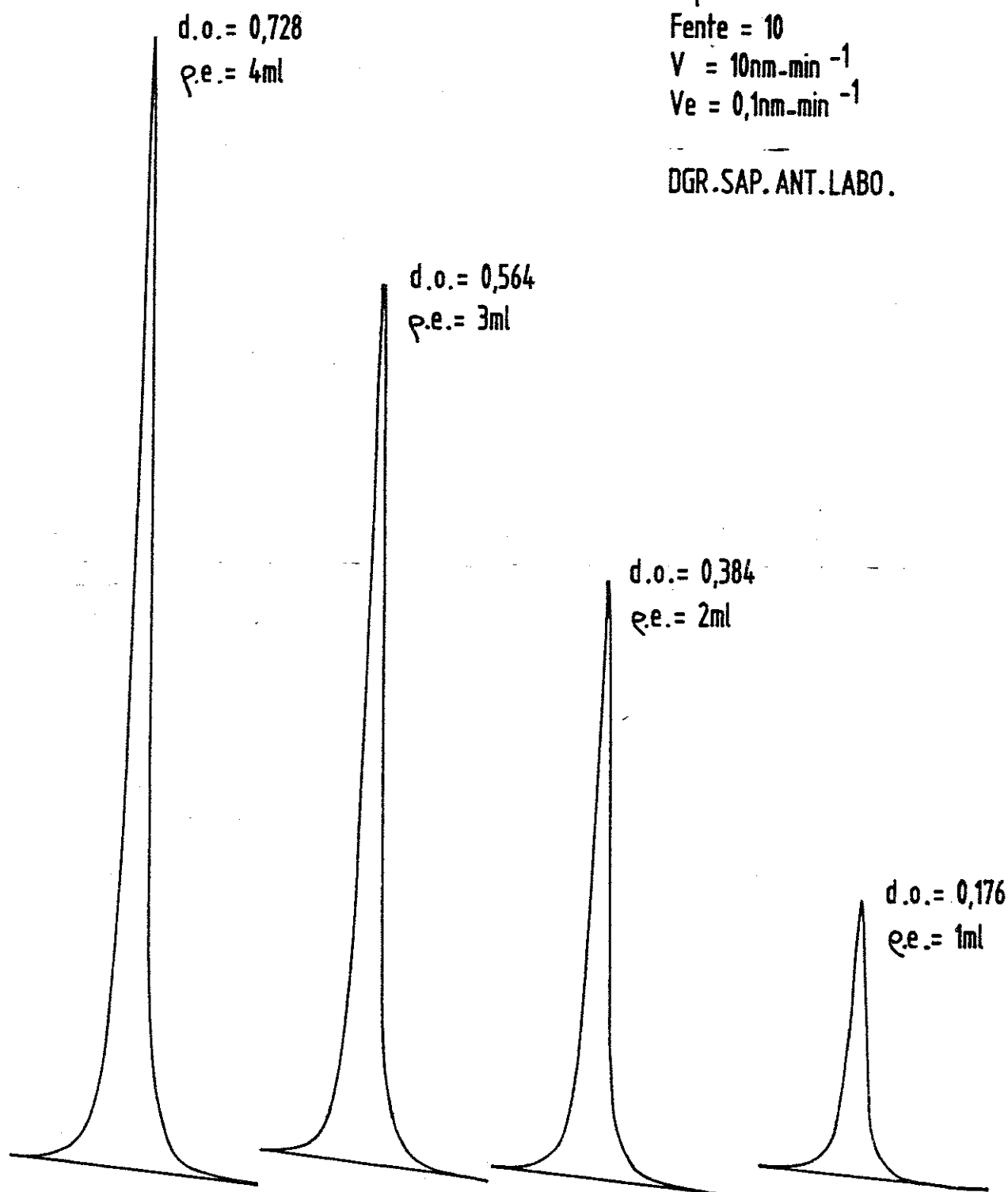
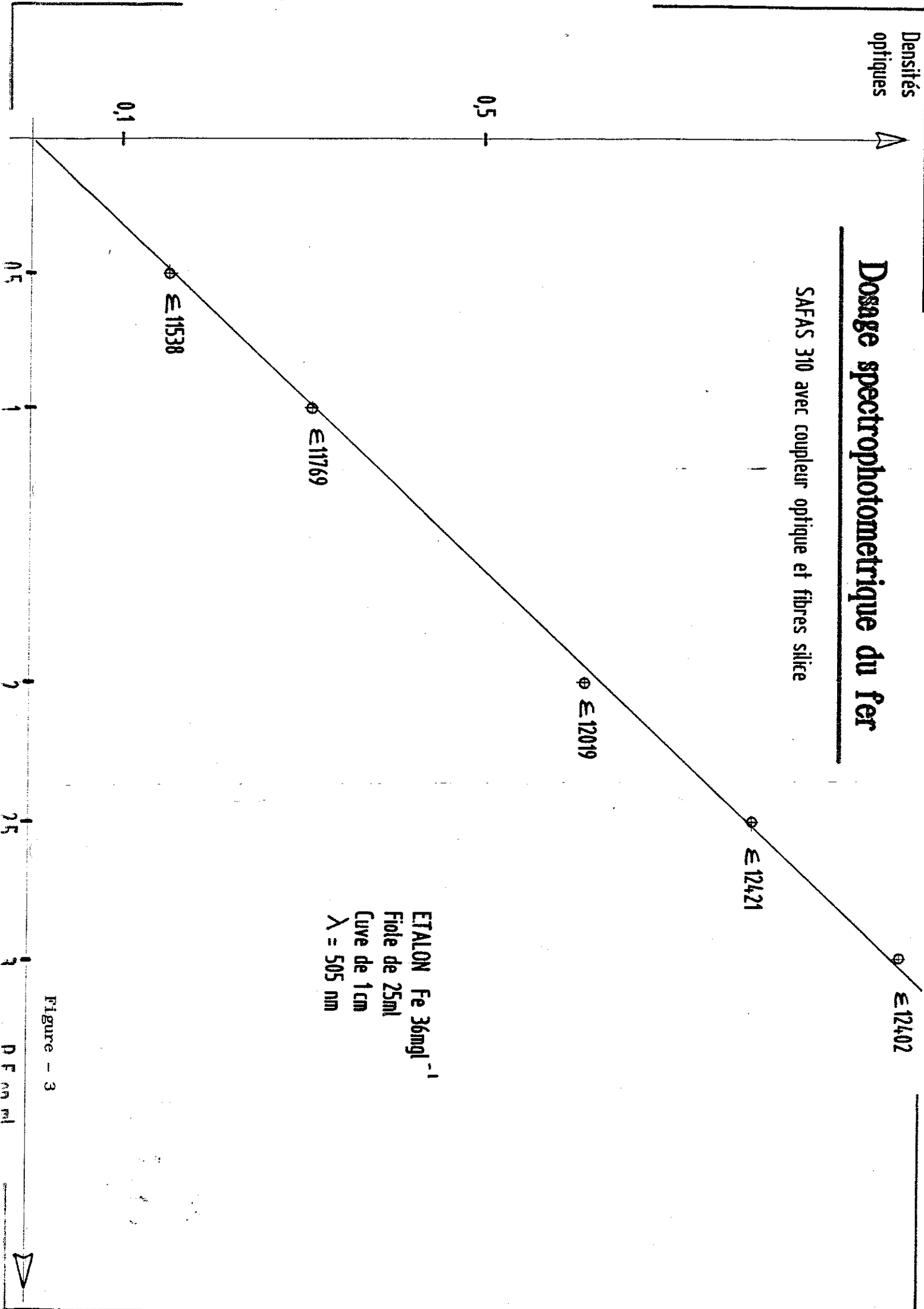


Figure _2

Densités optiques

Dosage spectrophotométrique du fer

SAFAS 310 avec coupleur optique et fibres silice



ETALON Fe 36mg/l⁻¹
Fiole de 25ml
Cuve de 1cm
 $\lambda = 505 \text{ nm}$

Figure - 3

DF en ml

