

2 10 | 562 phy OK

T H E S E

présentée

A L'UNIVERSITE DE PARIS - SUD

CENTRE D'ORSAY

Pour obtenir le titre de Docteur 3ème cycle

SPECIALITE : PHYSIQUE NUCLEAIRE APPROFONDIE

OPTION : PHYSIQUE DES REACTEURS

par

Jean-François MUSSO

SUJET : Détermination de puissance et de taux d'épuisement de combustibles nucléaires irradiés à OSIRIS par spectrométrie gamma en pile

Soutenue le 11 Juin 1976

devant la Commission d'Examen

MM. J. HOROWITZ, Président

J. BUSSAC

J.J. GRAF, Examineurs

J. BOUCHARD

M. DESTOT

T H E S E

présentée

A L'UNIVERSITE DE PARIS - SUD

CENTRE D'ORSAY

Pour obtenir le titre de Docteur 3ème cycle

SPECIALITE : PHYSIQUE NUCLEAIRE APPROFONDIE

OPTION : PHYSIQUE DES REACTEURS

par

Jean-François MUSSO

SUJET : Détermination de puissance et de taux d'épuisement de combustibles nucléaires irradiés à OSIRIS par spectrométrie gamma en pile

ST 4/42 12

Soutenue le 11 Juin 1976

devant la Commission d'Examen

MM. J. HOROWITZ, Président

J. BUSSAC

J.J. GRAF, Examineurs

J. BOUCHARD

M. DESTOT

REMERCIEMENTS

Je désire exprimer à Monsieur HOROWITZ, Directeur de l'Institut de Recherche Fondamentale, Professeur Associé à l'Université de Paris VI, ma respectueuse reconnaissance pour avoir bien voulu diriger cette thèse et présider le Jury d'examen.

Je prie Monsieur BUSSAC, Directeur à la C.I.S.I., Professeur Associé à l'Université de Paris XI, Professeur à l'I.N.S.T.N., de recevoir l'expression de ma profonde gratitude. Ses enseignements de neutronique dans le cadre du D.E.A. de Physique des Réacteurs sont à l'origine de ce travail.

J'adresse à Monsieur GRAF, Chef des Services des Piles de Saclay, qui a bien voulu m'accueillir dans son service et favoriser le développement de cette étude, mes plus sincères remerciements.

Je suis particulièrement sensible à la présence de Monsieur BOUCHARD, Chef du Service d'Etudes Nucléaires, parmi les membres du Jury. Qu'il en soit remercié.

Je tiens à manifester ma vive reconnaissance à Monsieur GENTHON, Chef de la Section d'Etudes et de Réalisations des Irradiations, et Monsieur CERLES, Chef de la Section d'Evaluation et d'Application des Rayonnements de Pile, pour l'accueil chaleureux qu'ils m'ont réservé et l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail.

Je désire remercier tout particulièrement Monsieur DESTOT pour l'aide constante, inconditionnelle et amicale qu'il m'a apportée. Ses précieux conseils constituent une contribution irremplaçable à l'élaboration de cette thèse.

J'espère que Messieurs GAILLET, CHEVALIER, LOCARD et SALON, ainsi que tout le personnel de la S.E.A.R.P., avec qui j'ai eu l'occasion d'effectuer

cette étude, gardent le meilleur souvenir de ce travail. Je tiens à leur renouveler mes sincères remerciements.

Je voudrais aussi remercier Mademoiselle BARON pour l'attention particulière avec laquelle elle a suivi le déroulement de la thèse.

Enfin, je désire exprimer mes vifs remerciements à Madame PARIS, qui a assuré la frappe de ce manuscrit avec une célérité remarquable et une rare application.

S O M M A I R E

INTRODUCTION

CHAPITRE I - PRINCIPES GENERAUX	I. 1
I. 1 - <u>Définitions</u>	I. 2
I. 1. 1 Définition de la puissance d'irradiation	I. 2
I. 1. 2 Définition du taux de combustion	I. 3
I. 2 - <u>Les différentes méthodes de détermination de taux de combustion et de puissance</u>	I. 4
I. 2. 1 Méthodes destructives	I. 5
I. 2. 2 Méthodes non destructives	I. 5
I. 2. 2. 1 . par bilan thermique	I. 6
I. 2. 2. 2 . par dosimétrie	I. 6
I. 3 - <u>La spectrométrie gamma en pile</u>	I. 7
I. 3. 1 Principes et avantages	I. 7
I. 3. 2 Principales applications	I. 8
I. 3. 3 Détermination des paramètres de l'irradiation par spectrométrie gamma en pile	I. 8
I. 3. 3. 1 . principes	I. 8
I. 3. 3. 2 . problèmes posés	I. 9
CHAPITRE II - MOYENS EXPERIMENTAUX ET METHODES DE CALCUL	II. 1
II. 1 - <u>Le système d'acquisition des données</u>	II. 2
II. 1. 1 Principe	II. 2
II. 1. 2 Description de l'installation	II. 2
II. 1. 3 L'acquisition des données	II. 4
II. 1. 3. 1 . les différentes étapes de l'acquisition des données	II. 4
II. 1. 3. 2 . correction de décroissances radioactives	II. 6
II. 2 - <u>Les codes de calculs</u>	II. 8
II. 2. 1 Le programme JONQUE	II. 8
II. 2. 2 Le programme PICFEE 2	II. 10
II. 2. 3 Le programme MERCURE IV	II. 11
II. 3 - <u>Détermination de l'activité des produits de fission</u>	II. 12
II. 3. 1 Principe	II. 12
II. 3. 2 Mesure en valeur relative	II. 13
II. 3. 3 Mesure en valeur absolue	II. 15

CHAPITRE III - DETERMINATION DIRECTE DU TAUX DE COMBUSTION PAR SPECTROMETRIE GAMMA EN PILE		III.1
III.1	- <u>Expression du taux de combustion en fonction de l'activité des produits de fission</u>	III.2
III.1.1	Données expérimentales de l'irradiation	III.2
III.1.2	Expression générale de l'activité des produits de fission	III.2
III.1.3	Expression du taux de combustion dans le cas d'irradiation de courte durée	III.4
III.1.4	Expression du taux de combustion dans le cas d'irradiation de durée élevée	III.5
III.2 - <u>Choix des émetteurs gamma</u>		III.6
III.2.1	Critères du choix	III.6
III.2.2	Etude des émetteurs gamma	III.7
III.3 - <u>Détermination expérimentale directe du taux de combustion</u>		III.9
III.3.1	Taux de combustion élevé	III.9
III.3.1.1	. principe	III.9
III.3.1.2	. résultats expérimentaux	III.10
III.3.2	Taux de combustion peu élevé	III.14
III.3.2.1	. principe	III.14
III.3.2.2	. résultats expérimentaux	III.15

CHAPITRE IV - DETERMINATION DE LA PUISSANCE D'IRRADIATION PAR SPECTROMETRIE GAMMA EN PILE		IV.1
IV.1	- <u>Principe de la méthode</u>	IV.2
IV.2	- <u>Sélection des produits de fission</u>	IV.3
IV.2.1	Observation et identification des produits de fission à vie courte	IV.3
IV.2.2	Les produits de fission sélectionnés	IV.4
IV.3	- <u>Les conditions expérimentales liées à l'irradiation</u>	IV.5
IV.4	- <u>Détermination de la puissance d'irradiation</u>	IV.7
IV.4.1	Méthode	IV.7
IV.4.2	Résultats expérimentaux	IV.9

CONCLUSION

FIGURES

ANNEXE I - Les dispositifs d'irradiation

ANNEXE II - Expression de l'efficacité relative de la détection

ANNEXE III - Caractéristiques de la source de cobalt 60

ANNEXE IV - L'installation de spectrométrie gamma d'ISIS

I N T R O D U C T I O N

La conception générale d'OSIRIS (CEN/SACLAY), réacteur expérimental de type piscine, de puissance thermique 70 MW, est le résultat de choix techniques conduisant à une grande souplesse d'utilisation. C'est un outil particulièrement bien adapté, notamment aux études de comportement des combustibles des différentes filières, en fonctionnement normal comme en conditions accidentelles.

Pour interpréter ces études, de façon aussi parfaite que possible, il convient de connaître avec précision et rapidité les conditions dans lesquelles un essai d'irradiation est mené. Parmi les paramètres de référence, qui permettent une comparaison entre irradiation expérimentale et irradiation en réacteur de puissance, taux de combustion et puissance ont une place tout à fait centrale.

Leur bonne connaissance conditionne la qualité de l'interprétation physico-chimique du combustible étudié ; elle permet aussi le bon suivi des programmes d'irradiation expérimentaux quantitatifs (épuisement du combustible, contraintes hors conditions normales en température et en puissance, ...).

Pour être opérationnelle, la connaissance de ces paramètres doit non seulement être précise mais doit aussi pouvoir être acquise au cours de la campagne d'irradiation, et notamment lors de tous les moments délicats ou importants des essais programmés.

Jusqu'à présent, aucune méthode de détermination de puissance et de taux de combustion ne permettait de tenir à la fois tous ces enjeux : précision des résultats, rapidité des mesures, non destruction du combustible. Ainsi est née l'idée d'utiliser une technique de mise en oeuvre récente dans le cadre des réacteurs expérimentaux, la spectrométrie gamma en pile, pour résoudre l'ensemble de ces questions. Procédé non destructif, d'emploi souple et rapide, la spectrométrie gamma en pile permet déjà de suivre de façon quantitative les combustibles irradiés. Nous avons cherché à en tirer un développement supplémentaire, de type quantitatif.

La mise en oeuvre de cette technique expérimentale a fait l'objet des travaux de cette thèse. Nous rapportons ici les grandes lignes de l'étude poursuivie depuis un peu plus d'un an.

Le chapitre I contient une revue des principales méthodes expérimentales de détermination de taux de combustion ou de puissance d'irradiation et l'exposé des principes de la spectrométrie gamma en pile.

Dans le chapitre II, nous présentons les outils utilisés, les programmes de calcul, le dispositif expérimental à notre disposition.

Le chapitre III est consacré à la détermination du taux d'épuisement par spectrométrie gamma en pile.

Enfin, dans le chapitre IV, nous exposons la méthode de détermination de la puissance d'irradiation et nous donnons les premiers résultats obtenus.

*

*

*

C H A P I T R E I**PRINCIPES GÉNÉRAUX**

Avant d'exposer la méthode de détermination de taux de combustion et de puissance que nous avons mise au point ainsi que les moyens expérimentaux qui lui sont liés, nous pensons utile de rappeler le cadre général dans lequel s'inscrit cette étude, en présentant tour à tour les problèmes posés, les difficultés à résoudre, les points d'appuis à notre disposition.

On abordera successivement dans ce chapitre :

- la définition de la puissance d'irradiation et du taux de combustion,
- les principales méthodes expérimentales de détermination de ces paramètres,
- les principes et les applications de la spectrométrie gamma en pile.

I.1 - DEFINITIONS.

I.1.1 - Définition de la puissance d'irradiation :

L'énergie libérée par fission dans le combustible a plusieurs sources :

- énergie cinétique des fragments de fission,
- énergie des rayons gamma instantanés ou différés (après radioactivité β),
- énergie due à la radioactivité β des produits de fission,
- énergie des neutrons prompts ou retardés.

La puissance dégagée dans le combustible correspond à cette énergie par unité de temps :

$$P = \sum_j c_j \times f_j \quad (I.1)$$

où c_j représente le coefficient de conversion des fissions en énergie de l'isotope j (en Joule/fission)

f_j le taux de fission de l'isotope j (en fissions/seconde)

$$f_j = \int_0^{\infty} \Sigma f_j (E) \times \phi (E) d E$$

avec : $\Sigma f_j (E)$: section efficace macroscopique de fission

$\phi (E)$: le flux de neutrons par unité d'énergie

La puissance s'exprime communément, soit en puissance spécifique en W/cm² de combustible, soit en puissance linéaire en W/cm de combustible.

I.1.2 - Définition du taux de combustion :

Le taux de combustion peut s'exprimer de deux façons :

a) soit dans une unité directement proportionnelle au nombre de fissions.

Le taux de combustion désigne alors le rapport entre le nombre total de fissions et le nombre de noyaux fissiles initial. Notons que dans ce rapport sont prises en compte les fissions produites par les noyaux fissiles présents au départ ou formés pendant l'irradiation et les fissions rapides subies par les noyaux fertiles :

$$T_{C.F.} = \frac{\sum_j F_j}{\sum_j N_{j0}}$$

où F_j représente le nombre de fissions de l'isotope j durant l'irradiation,

$$F_j = \int_0^{t_{ir}} f_j(t) dt \quad (t_{ir} : \text{durée de l'irradiation})$$

N_{j0} le nombre initial de noyaux fissiles j

b) soit par l'énergie produite par tonne de combustible en mégawatt jour par tonne (MWj/t) :

$$T_{C.T.} = \frac{\bar{c}}{M} \times \sum_j F_j \quad (I.2)$$

avec M : masse volumique initiale du combustible ou masse des atomes lourds en tonne par cm³, le nombre total de fission étant donné par cm³ de combustible.

$$\bar{c} = \frac{\sum_j c_j \times F_j}{\sum_j F_j} \quad : \quad \text{coefficient moyen de conversion des fissions en énergie (en Joule/fission)}$$

A titre indicatif, on donne la valeur des coefficients c_j (en MeV/fission) de quelques isotopes dans le tableau suivant [1] :

^{235}U	^{238}U	^{239}Pu	^{241}Pu
193,66	193,86	198,16	200,07

Dans la suite de cette étude, nous exprimerons le taux de combustion en énergie dégagée (MWj/t), unité généralement utilisée par les exploitants de réacteurs.



I.2 - LES DIFFERENTES METHODES DE DETERMINATION DE TAUX DE COMBUSTION ET DE PUISSANCE.

Les méthodes de mesure de puissance d'irradiation ou de taux d'épuisement [2], trouvent leur origine dans les phénomènes qui accompagnent la fission : libération d'énergie, variation de la composition en isotopes fissiles et apparition de produits de fission. Nous distinguerons, parmi les techniques utilisées, les méthodes destructives et non-destructives. Nous les présentons succinctement ici en mentionnant leurs limites et les raisons du choix, a contrario, de la spectrométrie gamma en pile.

I.2.1 - Méthodes destructives :

Le dosage chimique par spectrométrie de masse et la spectrométrie gamma en laboratoires de hautes activités sont les deux techniques couramment employées :

- l'analyse par spectrométrie de masse d'échantillons de l'élément combustible fournit la teneur isotopique en atomes lourds ou la concentration en produits de fission. De ces valeurs, on déduit le nombre de fissions pendant l'irradiation :

Dans le cas où les fissions proviennent essentiellement de l'uranium 235, on compare la teneur initiale et finale en ^{235}U . L'appauvrissement en ^{235}U corrigé des disparitions par captures neutroniques (mesure de la teneur en ^{236}U) fixe le nombre de fissions produites.

Dans le cas où les fissions proviennent de différents isotopes (ceux de l'uranium et du plutonium), on détermine le taux de combustion à partir de la concentration en ^{148}Nd [3]. C'est le produit de fission stable, de faible section efficace de capture neutronique ($\sigma_{2200} = 2,5 \text{ b}$) [4], donc directement lié au nombre d'atomes disparus par fission.

- la spectrométrie gamma en laboratoires de hautes activités, qui porte sur des échantillons du combustible irradié, permet de mesurer l'activité des produits de fission radioactifs. Si les produits détectés sont représentatifs du nombre total de fissions, on peut tirer de ces mesures la valeur du taux de combustion.

Tardives, destructives, ponctuelles, ces analyses se révèlent donc mal adaptées au suivi des irradiations et ne sont pas représentatives de l'ensemble du combustible.

I.2.2 - Méthodes non destructives :

A chaque dispositif d'irradiation (annexe I), est associé une instrumentation spécifique (thermocouples, sondes, capteurs) qui fournit en permanence températures, flux neutroniques et pressions. A partir de ces données expé-

rimentales, on peut déterminer la puissance d'irradiation et le taux de combustion soit par bilan thermique, soit par dosimétrie :

- par bilan thermique : on évalue la puissance globale véhiculée par le fluide de refroidissement du dispositif d'irradiation [5]. Cette puissance est calculée à partir des mesures de températures aux extrémités du canal d'essai et des mesures de débits. Elle comprend :

- . la puissance dégagée par fission dans le combustible,
- . la puissance due au rayonnement gamma des structures,
- . la fuite thermique entre le canal d'essai et le canal annulaire de retour au fluide caloporteur.

Une fois connues la puissance gamma des structures et la fuite thermique, on peut estimer la puissance due aux fissions. Le taux de combustion est alors évalué à partir de ces estimations de puissances effectuées pendant toute l'irradiation.

La précision des résultats obtenus par cette méthode est comprise entre 10 % et 20 %.

- par dosimétrie : on détermine, au début de l'irradiation, la puissance de fission et les sections efficaces effectives de fission ou de capture des isotopes du combustible étudié. Ces données permettent d'effectuer des calculs d'évolution donnant à tout instant de l'irradiation, la puissance dégagée par fission et le taux de combustion [6] :

Pour cela, on procède à l'irradiation d'échantillons du combustible vierge, d'une part en colonne thermique, d'autre part dans un emplacement du réacteur (l'échantillon est alors placé dans une maquette neutronique du dispositif réel).

La comparaison après irradiation des activités spécifiques des deux échantillons, fixe le rapport entre le taux de réaction en pile et le taux de réaction de référence en colonne thermique. On peut ainsi déterminer les sections efficaces effectives des constituants du combustible.

La connaissance des flux en colonne thermique et des sections efficaces thermiques permet de calculer le taux de réaction en pile et par conséquent, la puissance d'irradiation en pile de l'échantillon.

Parallèlement à ces estimations, on mesure le courant délivré par les sondes de flux thermiques placées tout à côté de l'échantillon irradié en pile. On détermine alors, pour la maquette, le rapport de la puissance au courant sonde. En supposant parfaite la similitude entre le dispositif expérimental et sa maquette neutronique, ce rapport vaut donc aussi pour le dispositif réel. La mesure du courant délivré par les sondes de flux dans le dispositif réel, au cours de l'irradiation, donne ainsi la puissance dégagée par fission dans le combustible étudié.

La précision des résultats est d'environ 10 à 15 %. Les inconvénients et les limites que présentent ces méthodes - bilan thermique et dosimétrie - nous ont conduit à envisager une direction de recherche différente pour déterminer le taux de combustion et la puissance par spectrométrie gamma en pile.



I.3 - LA SPECTROMETRIE GAMMA EN PILE.

I.3.1 - Principe et avantages :

Appliquée au contrôle des combustibles nucléaires, la spectrométrie gamma en pile repose sur l'examen des produits de fission à partir de leur émission gamma [6]. Grâce à cette technique, il est possible de suivre dans le temps et l'espace un grand nombre de produits de fission et ainsi d'en tirer des enseignements précieux sur la vie du combustible étudié.

Le dispositif de spectrométrie gamma situé à proximité du coeur du réacteur permet :

- l'examen des éléments combustibles à tout moment jugé utile (et tout particulièrement pendant l'arrêt qui sépare deux cycles successifs du réacteur). On peut ainsi suivre l'évolution des produits de fission à différentes étapes de l'irradiation,

- l'observation des radionuclides à période courte, quelques minutes suffisant généralement pour transférer le combustible de l'emplacement d'irradiation au banc de mesure,

- l'étude de toute la capsule d'irradiation (combustible, circuit caloporteur, structures, ...) aucun démontèlement n'intervant.

I.3.2 - Principales applications :

On peut considérer les résultats fournis par la spectrométrie gamma sous deux aspects :

. l'analyse qualitative qui met en évidence les modifications physico-chimiques du combustible irradié et des structures (rupture de gaine, densification du combustible ou défaut de matière fissile, formation de cheminée centrale). Elle donne aussi la distribution spatiale des produits de fission, montrant ainsi leur capacité de migration, dans le combustible et le caloporteur, leur fixation dans les structures, ...

. l'analyse quantitative qui permet de déterminer la quantité relative ou absolue des produits de fission dans le combustible. Cette analyse peut également s'effectuer sur le fluide caloporteur dans le cas de dégagement de produits de fission hors combustible (par exemple à la suite d'une rupture de gaine). Elle autorise une étude plus fine de la cinétique des produits de fission et la détermination des paramètres de l'irradiation (taux de combustion, puissance).

I.3.3 - Détermination des paramètres de l'irradiation par spectrométrie gamma en pile :

1.3.3.1 - principes :

La mesure de l'activité des produits de fission à vie longue (c'est-à-dire de période supérieure de plusieurs ordres de grandeur à la durée de l'irradiation) ou de descendants à vie courte de radionuclides à vie longue, permet de comptabiliser les atomes disparus par fission pendant toute l'irradiation [7]. Elle conduit donc au taux de combustion.

L'activité des produits de fission à période courte (de quelques dizaines de minutes à quelques jours) étant directement liée au nombre instantané de fissions, sa détermination conduit à la puissance de l'irradiation.

I.3.3.2 - les problèmes posés :

Les principales difficultés concernent l'identification et le dosage des produits de fission :

- la complexité des spectres gamma observés, l'importance du bruit de fond rendent parfois délicats l'identification et le dosage des produits de fission,
- la détermination de l'activité des produits de fission nécessite un étalonnage précis de la chaîne de mesure et la connaissance de la transmission (à travers les structures) des photons émis dans le combustible.

L'intérêt de la spectrométrie gamma en pile, appliquée à la détermination des paramètres de l'irradiation, dépend essentiellement des solutions apportées à ces problèmes. Dans notre étude, on s'est donc tout spécialement attaché à définir une méthode applicable à la plupart des expériences en pile et de mise en oeuvre rapide.



CHAPITRE II

MOYENS EXPERIMENTAUX ET METHODES DE CALCULS

Dans ce chapitre, nous présentons :

- le système d'acquisition des données,
- les codes de calculs employés,
- la méthode de détermination de l'activité des produits de fission.

II.1 - LE SYSTEME D'ACQUISITION DES DONNEES.

II.1.1 - Principe :

Le dispositif d'irradiation (boucle ou capsule), placé sur le banc de spectrométrie gamma défile lentement devant un collimateur.

Un détecteur Ge(Li) reçoit le faisceau gamma issu d'un élément de volume du combustible irradié, volume délimité par la fenêtre de collimation.

II.1.2 - Description de l'installation :

Le banc de spectrométrie gamma :

Le banc de spectrométrie gamma est situé dans l'enceinte du réacteur, sur une des parois de la piscine (figure n° 1), soit tout à proximité du coeur. Il est donc aisé de transférer très rapidement un élément irradié de son emplacement en pile à sa position d'examen (figure n° 2). Il est de même possible d'accéder au banc de mesure avec des éléments combustibles de provenance extérieure (crayons de centrale de puissance, par exemple).

Le dispositif d'essai, quelqu'il soit (élément combustible nu, en boucle ou en capsule) est maintenu sur le banc, solidaire d'une table présentant deux degrés de liberté :

- un déplacement vertical entraîné par moteur selon un mouvement lent et continu, commandé par ordinateur, avec inversion de sens aux extrémités de la longueur à examiner. Sa position est suivie au 1/100 de mm par le calculateur grâce à un repérage fin du mouvement par photodiode.

- un déplacement horizontal réalisé actuellement par un dispositif à commande manuelle.

Le collimateur :

Le collimateur, fixe, se trouve dans un des canaux traversant les parois en béton de la piscine d'OSIRIS.

La partie utile est constituée par un cylindre en acier inoxydable, long de 60 cm présentant deux fentes d'ouverture réglable, commandées par des vis micrométriques :

- une fente verticale de 5 mm de hauteur et d'épaisseur variable (0 à 4mm).
- une fente horizontale de 25 mm de largeur et d'épaisseur variable (0 à 4mm).

Ainsi conçu, il permet d'ajuster l'angle solide du faisceau γ issu de l'élément examiné, pour que le signal reçu par le semicteur soit dans le domaine de sensibilité de la détection.

On dispose, à la sortie du canal, près du détecteur, d'une post-collimation également variable pour éliminer une partie des photons diffusés par les structures du collimateur.

Le détecteur :

C'est une diode constituée d'un cristal de germanium compensé au lithium, fonctionnant comme une chambre à ionisation solide.

Le détecteur utilisé est un semicteur Ge(Li)coaxial vrai de 60 cm³, monté sur un cryostat. Ses caractéristiques, sur le pic à 1 332 keV du ⁶⁰Co sont les suivantes :

- efficacité : $\geq 10 \%$
- résolution : $\leq 1,9 \text{ keV}$
- rapport pic/Compton : $\approx 35/1$

La chaîne électronique associée au détecteur comprend :

- un amplificateur CANBERRA 1 413
- un codeur CT 103
- un correcteur de dérive UT 103
- un analyseur ZOOMAX à 4 096 canaux.

Le calculateur MITRA 15, doté de deux périphériques à bande magnétique, assure la double fonction d'acquisition et de stockage des données.

II.1.3 - L'acquisition des données :

Le plus souvent, en spectrométrie gamma, la saisie des spectres se fait d'une manière discontinue par une succession de pointés échelonnés dans le temps et l'espace. Cette méthode présente deux inconvénients :

- d'abord le risque d'écarter une information importante quand celle-ci se situe entre deux pointés non continus,
- ensuite celui d'introduire une erreur systématique liée à l'évolution des P. F. (notamment pour les périodes courtes).

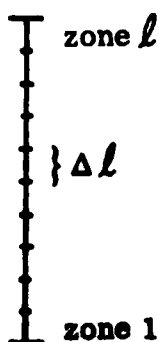
Le système d'acquisition en continu échappe à ces deux inconvénients, en évitant toute correction de décroissance entre les différents points examinés et en n'écarter aucune information.

Il utilise un double analyseur (ZOOMAX), un ordinateur (MITRA 15) et deux périphériques à bandes magnétiques fonctionnant en parallèle.

Le ordinateur a donc une double fonction :

- la commande programmée du déplacement de la table,
- le stockage sur bandes - compatibles IBM - des informations issues de l'analyseur (figure n° 3).

II.1.3.1 - les différentes étapes de l'acquisition des données :



La région explorée, de longueur L , est partagée en l zones contiguës de même longueur Δl (voir figure ci-contre).

La valeur Δl du pas et l'ouverture e de la fenêtre du collimateur sont fixées par l'utilisateur.

L'exploration commence à l'extrémité inférieure et se déroule ainsi :

- pendant le premier défilement de la zone j devant le collimateur, le spectre j_1 est stocké dans un des deux blocs-mémoires de l'analyseur ZOOMAX.

- en fin de zone, l'acquisition du spectre s'arrête et le calculateur commande l'enregistrement du spectre $(j + 1)_1$ de la zone $j + 1$ dans l'autre bloc-mémoire disponible de l'analyseur,

- pendant le temps de l'acquisition du spectre $(j + 1)_1$, les informations correspondant à la zone j sont transférées pour traitement dans le calculateur. Le bloc-mémoire ainsi libéré sera utilisé pour le stockage du spectre $(j + 2)_1 \dots$

- le calculateur effectue le calcul du taux de comptage dans chaque canal du spectre j_1 , soit :

$$\left(\frac{N_1}{Ta_1} \right)_{ij}$$

où l'indice j indique le numéro de la zone et l'indice i le numéro du canal.

N_1 le nombre d'impulsions durant le premier défilement

Ta_1 le temps actif de comptage

- le résultat (spectre j_1 en temps actif) est enregistré sur bande magnétique par l'un des deux périphériques associés au calculateur. Le processus continue jusqu'à l'inversion de sens du mouvement. Les ℓ spectres élémentaires correspondant au premier défilement sont donc stockés à la suite les uns des autres sur un périphérique du calculateur.

- après l'inversion de sens du défilement, les mêmes opérations se reproduisent (de la zone ℓ à la zone 1). De plus, lors du nouveau passage de la zone j devant le collimateur, le calculateur ajoute les nouvelles valeurs à celles du spectre enregistré au passage précédent.

- le spectre résultant (somme des passages 1 et 2) est enregistré sur une seconde bande magnétique par l'autre périphérique. A chaque inversion de sens du défilement, le rôle des deux bandes est permuté.

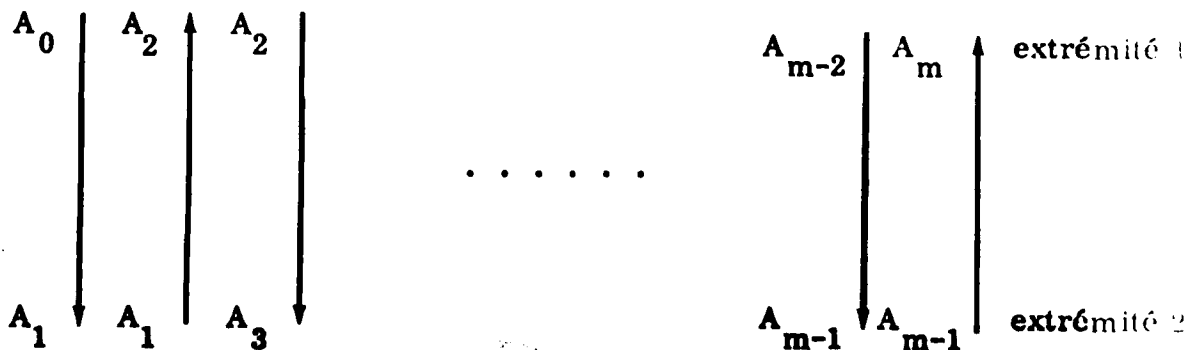
L'acquisition des données se poursuit jusqu'à l'accomplissement du nombre de cycles prévu par l'expérimentateur. On dispose alors, pour chaque zone, de l'enregistrement d'un spectre, constitué par la somme des spectres correspondant à chaque passage devant cette zone. Chaque enregistrement fournit un nombre d'impulsions par canal et par minute pour les m demi-cycles, soit :

$$N_{i, j} = \sum_{k=1}^m \left(\frac{N_k}{Ta_k} \right)_{i, j}$$

III.1.3.2 - correction de décroissance radioactive :

Considérons un produit de fission créé directement par fission, de constante radioactive λ . L'influence de la disparition des noyaux par radioactivité β sur les résultats est maximale entre les points extrêmes de la région explorée, car les mesures sont séparées par la durée maximale τ d'un demi-cycle.

Soit A_0 l'activité du P. F. au moment du premier comptage d'une extrémité, A_1 l'activité lors du premier comptage à l'autre extrémité, etc .



On a :

$$A_1 = A_0 e^{-\lambda\tau}$$

$$A_2 = A_0 e^{-2\lambda\tau}$$

...

$$A_m = A_0 e^{-m\lambda\tau}$$

Les sommes S_1 et S_2 des activités mesurées à chaque extrémité s'écrivent :

$$S_1 = A_0 \left(1 + 2 e^{-2\lambda\tau} + 2 e^{-4\lambda\tau} + \dots + 2 e^{-(m-2)\lambda\tau} + e^{-m\lambda\tau} \right)$$

$$S_2 = 2 A_0 e^{-\lambda\tau} \left(1 + e^{-2\lambda\tau} + e^{-4\lambda\tau} + \dots + e^{-(m-2)\lambda\tau} \right)$$

Soit :

$$\boxed{\frac{S_1}{S_2} = \operatorname{ch} \lambda \tau}$$

On constate que le rapport des activités S_1 et S_2 mesurées à chaque extrémité est :

- indépendant du nombre de cycles effectués,
- lié à la durée du demi-cycle et à la période du P. F.

(exemple : pour le ^{92}Sr ($T_{1/2} = 2,7 \text{ h}$), avec $\tau = 15 \text{ mn}$ (durée d'un demi-cycle)

$$S_1 / S_2 = 1,002).$$

Il suffit donc d'adapter la vitesse de défilement de la table à la période du P. F. observé pour écarter toute correction de décroissance entre les différentes zones de la région explorée.



II.2 - LES CODES DE CALCUL.

II.2.1 - Le programme JONQUE [8] :

(Code de dépouillement des spectres - obtenus avec un spectromètre Ge(Li))

Le programme JONQUE traite l'enregistrement obtenu après l'examen du combustible irradié et donne les informations indispensables à l'identification et au dosage des produits de fission.

Nous énonçons, dans leur chronologie, les étapes de ce traitement :

- localisation et sélection des pics : le programme utilise la méthode des différences secondes lissées [9], qui permet de localiser les pics avec une grande précision en présence d'un bruit de fond continu.

Le principe en est le suivant : dans le cas de spectres obtenus avec un détecteur Ge(Li), un pic est bien représenté par une fonction de Gauss $G(i)$ superposée à un fond continu linéaire.

Le contenu du canal i s'écrit :

$$N(i) = G(i) + a i + b$$

La dérivée seconde :

$$N''(i) = G''(i)$$

est indépendante du fond continu et s'annule dans une région sans pic.

- détermination des caractéristiques des pics :

- . estimation de la largeur à mi-hauteur et au dixième de la hauteur,
- . calcul de la surface S_j du pic, par intégration du contenu des canaux situés entre les limites $i_0 - p$ et $i_0 + q$ du pic et déduction du fond continu S_{Fj} ; celui-ci est approché par une droite ajustée par méthode de **moindres carrés** à partir de deux groupes de canaux voisins délimitant le pic :

$$S_j = \sum_{i=i_0-p}^{i_0+q} N_{ij} - S_{Fj}$$

. estimation de l'erreur sur la surface par la relation :

$$\Delta S_j = \sqrt{\Delta \left(\sum_{i=i_0-p}^{i_0+q} N_{ij} \right)^2 + \Delta \left(S_{Fj} \right)^2}$$

. détermination des énergies gamma à partir de la courbe de conversion Canal/Energie, représentée par :

$$E = cl + d \quad (E : \text{énergie en keV})$$

Les coefficients c et d sont introduits lors du traitement du spectre.

La version PIGME [10], développée pour tenir compte des conditions particulières de l'installation d'OSIRIS, effectue en plus les opérations suivantes :

- Tracé de la répartition axiale du taux de comptage et, en conséquence, de l'activité, sous les pics, de certains P. F. choisis :

. calcul de l'aire S de cette répartition :

$$S = \sum_{j=2}^l \frac{(S_{j-1} + S_j) \times \Delta l}{2}$$

On en déduit le taux de comptage moyen sur tout le combustible :

$$\bar{S} = \sum_{j=1}^l \frac{S_j \times \Delta l}{L}$$

II.2.2 - Le programme PICFEE 2 [11] :

(Code de création de produits de fission)

Le programme PICFEE 2 calcule la concentration ou l'activité des produits de fission dans un combustible irradié, soit pendant, soit après l'irradiation. Il permet donc de relier l'activité des produits de fission au moment de la mesure à leur production et à leur disparition.

Le code effectue aussi des calculs de spectre gamma et de puissance résiduelle (gamma et beta).

Ces calculs se font à partir de valeurs enregistrées sur la bande bibliothèque du programme PICFEE. Elle comprend :

- l'évolution de la concentration des produits de fission après une fission,
- l'évolution de spectre gamma, de la puissance résiduelle gamma et beta pour l'ensemble des produits de fission.

Le programme PICFEE 2 traite cinq types de fissions :

- les fissions de l'uranium 235 et du plutonium produites par des neutrons thermiques et rapides ($E \sim 1$ MeV). Du point de vue de la création des produits de fission, on assimile les fissions sur les isotopes du plutonium à celles du ^{239}Pu ,
- les fissions de l'uranium 238 induites par des neutrons rapides.

Le programme PICFEE 2 utilise, pour le calcul des concentrations ou des activités, les données suivantes :

- le diagramme d'irradiation qui peut être formé d'une succession de paliers de puissance,
- la liste des produits de fission dont on désire connaître l'activité ainsi que les temps auxquels on demande le calcul d'activité (pendant ou après l'irradiation),
- la répartition des fissions entre les différents nuclides fissiles.

II.2.3 - Le programme MERCURE IV [12] :

L'étude de la transmission des photons à travers les différents milieux qui séparent le détecteur de la source gamma (le combustible, les structures associées, ...) est réalisée à l'aide du programme MERCURE IV.

Il calcule l'atténuation en ligne droite des particules (photons ou neutrons) dans une géométrie tri-dimensionnelle en intégrant le noyau ponctuel par une méthode de MONTE-CARLO.

a) La technique de calcul :

Le programme de calcul utilise une technique de discrétisation de la source $S(\vec{r}, E)$ en espace et en énergie.

Il calcule à la position \vec{r}_0 la réponse R demandée (dose, échauffement, flux) :

$$R(\vec{r}_0) = \iiint_V \sum_{g=1}^G S(\vec{r}, g) G(\vec{r}, \vec{r}_0, g) d^3 r$$

où V représente le domaine spatial de la source

g le numéro du groupe d'énergie

$G(\vec{r}, \vec{r}_0, g)$ le noyau ponctuel d'atténuation en ligne droite. Pour une source de photons et pour la réponse cherchée (flux sans choc), il prend la forme :

$$G(\vec{r}, \vec{r}_0, g) = \frac{e^{-\sum_i \Sigma_{ig} a_i (|\vec{r} - \vec{r}_0|)}}{4\pi |\vec{r} - \vec{r}_0|^2}$$

avec Σ_{ig} la section efficace d'atténuation du milieu i dans le groupe g

$a_i (|\vec{r} - \vec{r}_0|)$ la distance parcourue dans le milieu i

L'intégrale est calculée par une méthode de MONTE-CARLO.

b) Les données :

On décrit successivement :

- la géométrie des milieux rencontrés (le dispositif expérimental, le collimateur, ...)
- la source photonique (distribution spatiale, angulaire).

On fournit les sections efficaces d'atténuation des différents milieux à partir de tables spécifiques [13].

Enfin, on choisit la fonction réponse et les points où cette réponse est demandée.



II.3 - DETERMINATION DE L'ACTIVITE DES PRODUITS DE FISSION.

II.3.1 - Principe :

L'exploration en défilement continu de l'élément combustible étudié conduit, après traitement des enregistrements, à la connaissance de la distribution axiale de l'activité des P. F. (puisqu'on dispose de la répartition axiale des taux de comptage pour toutes les raies gamma détectées).

Pour déterminer l'activité d'un produit de fission, on compare le taux de comptage de la raie gamma examinée du produit de fission avec celui d'une

source-étalon de ^{60}Co . Cette source est comptée sur le banc de mesure dans les mêmes conditions que l'élément combustible étudié, c'est-à-dire avec la même ouverture de diaphragme.

La comparaison entre les taux de comptage relatifs à des photons d'énergies différentes ne traversant pas les mêmes milieux, exige :

- la détermination de l'efficacité relative de la détection,
- la connaissance de la transmission des photons (émis par le combustible ou la source-étalon) à travers les milieux séparant le détecteur de la source gamma.

II.3.2 - Mesure en valeur relative :

On relie le taux de comptage moyen \bar{S} (en impulsions par seconde) de la raie gamma examinée, à l'activité moyenne (sur tout le combustible) du produit de fission par la relation :

$$\bar{A} = \frac{\bar{S}}{I \times \eta} \times \frac{1}{V_c} \quad (\text{en d. p. s/cm}^3) \quad (\text{II.1})$$

avec \bar{A} : activité moyenne du produit de fission détecté

I : taux d'émission des photons par désintégration

V_c : volume combustible détecté

η : efficacité absolue de la détection, c'est-à-dire le rapport du nombre de photons qui contribuent au pic d'absorption totale au nombre de photons émis à l'énergie considérée ; ce coefficient dépend des conditions expérimentales :

- . répartition des sources gamma dans le combustible (autoabsorption des rayonnements),
- . nature et géométrie des structures qui entourent le combustible,
- . angle solide sous lequel le détecteur voit la source,
- . efficacité intrinsèque du détecteur.

Le rendement η de la détection peut aussi s'écrire :

$$\eta = \varphi \times \epsilon \times p \quad (\text{II. 2})$$

où :

φ représente le flux de photons au niveau du détecteur provenant d'une source photonique unité

ϵ le nombre d'impulsions dans le pic d'absorption totale pour un flux de photon unité (il dépend seulement de l'énergie des photons)

p le rapport pic sur total, c'est-à-dire le rapport du nombre d'absorptions totales sur le nombre total des interactions mesurées.

La bonne connaissance de l'efficacité de la détection peut être contrariée par des conditions expérimentales défavorables. En particulier, l'éloignement de la source gamma par rapport au détecteur, l'atténuation des rayonnements dans le combustible et les structures associées, empêchent la détermination directe du rendement à partir des sources-étalon usuelles.

Cette impossibilité nous a conduit à développer une méthode adaptée à notre dispositif de détection : on détermine l'efficacité RELATIVE ρ de la détection, c'est-à-dire le rapport des rendements énergétiques entre énergie d'émission de la raie examinée du produit de fission et celle de la source-étalon.

Dans la plage énergétique qui nous intéresse, comprise entre environ 500 keV et 1 500 keV, l'expression du rendement relatif est bien représentée par :

$$\text{Log } \rho = a x^2 + bx \quad (\text{II. 3})$$

avec x : $\text{Log} \left(\frac{E_s}{E} \right)$

E_s : énergie des photons émis par la source-étalon

E : énergie de la raie examinée du produit de fission

On calcule les coefficients a et b à partir du comptage d'un produit de fission émettant un nombre suffisant de raies gamma, d'intensités élevées et connues avec précision dans un large domaine spectral (voir annexe II).

Le plus souvent, nous retenons le lanthane 140, produit de fission généralement stable (du point de vue cinétique) et abondant (fort rendement de fission et période suffisamment courte).

Ses caractéristiques figurent dans le tableau ci-dessous :

Période [14]		Rendement de fission cumulée % [15]		Section de capture neutronique [4]	Emission gamma [14]	
réelle	apparente				Energie keV	Intensité I_{γ} / I_{β}
40,23 heures	12,79 jours (¹⁴⁰ Ba)	²³⁵ U _{th}	6,32	2,7 ± 0,3 b	328	0,18
		²³⁸ U _{rap}	6,02		487	0,42
		²³⁹ Pu _{th}	5,58		816	0,20
		²⁴¹ Pu _{th}	5,90		1 596	0,88
					2 522	0,03

Tableau n° II. 1

II.3.3 - Mesure en valeur absolue :

Une fois établi le rendement relatif de la détection, le recalage en valeur absolue s'effectue à l'aide d'une source-étalon. Nous avons choisi le ⁶⁰Co pour sa période élevée et ses raies intenses à haute énergie (voir tableau ci-après [1] et annexe III).

Période	Emission gamma	
	Energie (keV)	Intensité
5,6 ans	1 173,22	99,86
	1 332,48	99,99

Tableau n° II.2

La relation (II.1) permet d'exprimer l'activité absolue d'un produit de fission en fonction de l'activité de la source-étalon :

$$\bar{A} = \frac{\bar{S}}{S_{60}} \times \frac{I_{60}}{I} \times \frac{\eta_{60}}{\eta} \times \frac{V_s}{V_c} \times A_{60} \quad (\text{II.4})$$

avec S_{60} : taux de comptage du ^{60}Co

A_{60} : activité de la source de ^{60}Co au moment de la mesure

V_s : volume source détecté

η_{60} : efficacité absolue de la détection à 1 332 keV

I_{60} : taux d'émission par désintégration de la raie à 1 332 keV

Le rapport des rendements énergétiques se déduit de la relation (II.2) :

$$\frac{\eta_{60}}{\eta} = \frac{1}{P} \times \frac{\varphi_{60}}{\varphi}$$

Le rapport des transmissions φ_{60} / φ entre la transmission des photons issus de la source-étalon et celle des photons provenant du combustible est calculé à l'aide du programme MERCURE IV présenté précédemment.



CHAPITRE III

DETERMINATION DIRECTE DU TAUX DE COMBUSTION PAR

SPECTROMETRIE GAMMA EN PILE

Ce chapitre aborde successivement :

- la recherche d'une expression du taux de combustion en fonction de l'activité des produits de fission représentatifs de l'irradiation,
- le choix de ces produits de fission,
- la détermination du taux de combustion, une fois mesurée l'activité des produits de fission retenus,
- les premiers résultats obtenus.

III.1 - EXPRESSION DU TAUX DE COMBUSTION EN FONCTION DE L'ACTIVITE DES PRODUITS DE FISSION.

III.1.1 - Données expérimentales de l'irradiation :

L'expression du taux de combustion se déduit de la valeur de l'activité γ des produits de fission, mesurée par la méthode exposée au chapitre précédent.

Pour passer de cette activité mesurée au nombre total de fissions créées pendant l'irradiation, il faut pouvoir déterminer l'évolution dans le temps de la concentration des produits de fission et, pour cela, connaître :

- le temps de refroidissement, qui sépare la fin de l'irradiation de la mesure d'activité gamma,
- l'histogramme de puissance (durée et niveaux relatifs de puissance des paliers d'irradiation).

Les données sont généralement bien connues.

Quand les produits de fission détectés ont une période supérieure de plusieurs ordres de grandeur, à la durée d'irradiation et de refroidissement, la connaissance de ces données expérimentales n'est plus nécessaire.

III.1.2 - Expression générale de l'activité des produits de fission :

La concentration des produits de fission évolue dans le temps en fonction de leur production et de leur disparition :

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_j N_j(t) \int_0^\infty y_j(E) \sigma_{f_j}(E) \phi(E, t) dE + N_{i-1}(t) \int_0^\infty \sigma_{c, i-1}(E) \phi(E) dE + \lambda_k N_k(t) - N_i \left(\lambda_i + \int_0^\infty \sigma_{a, i}(E) \phi(E, t) dE \right) \quad (\text{III.1})$$

- les indices i et k caractérisent les produits de fission,
- l'indice j est réservé aux noyaux fissiles.
- les trois premiers termes du second membre représentent les sources de l'isotope i par fission, capture neutronique et filiation radioactive ; les deux autres représentent les disparitions par décroissance radioactive et absorption.

Cette équation se simplifie sensiblement, si l'isotope est produit directement par fission (ou de période très grande devant celle de ces ascendants) et s'il disparaît seulement par décroissance radioactive :

$$\frac{dN}{dt} = \sum_j y_{cj} f_j(t) - \lambda N \quad (\text{III.2})$$

avec N : concentration du produit de fission

y_{cj} : rendement cumulé de l'isotope pour les fissions des noyaux j .

On suppose ce facteur indépendant du spectre neutronique.

$$f_j(t) = N_j(t) \int_0^{\infty} \sigma_f(E) \phi(E, t) dE : \text{taux de fissions des noyaux } j$$

λ : constante de décroissance radioactive du produit de fission.

La solution de l'équation simplifiée pour une irradiation de durée t_{ir} est :

$$N = e^{-\lambda t_{ir}} \sum_j y_{cj} \int_0^{t_{ir}} f_j(t) e^{\lambda t} dt \quad (\text{III.3})$$

Nous étudierons deux cas suivant la durée de l'irradiation.

III.1.3 - Expression du taux de combustion dans le cas d'irradiations de courte durée

En supposant les taux de fissions constants (on maintient généralement les expériences à puissance constante), la concentration du produit de fission se déduit simplement de (III.3) :

$$N = \bar{y}_c \times \sum_j f_j \times \frac{1 - e^{-\lambda t_{ir}}}{\lambda} \quad (\text{III.4})$$

avec
$$\bar{y}_c = \sum_j y_{cj} \times \frac{f_j}{\sum_j f_j}$$

Les rapports $\frac{f_j}{\sum_j f_j}$ représentent les pourcentages respectifs des

fissions des différents isotopes. Ces rapports se déduisent de la composition isotopique initiale du combustible :

$$\frac{f_j}{\sum_j f_j} = \frac{\bar{\sigma} f_j \times N_{j0}}{\sum_j \bar{\sigma} f_j \times N_{j0}}$$

où
$$\bar{\sigma} f_j = \frac{\int_0^\infty \sigma_{f_j}(E) \phi(E) dE}{\int_0^\infty \phi(E) dE}$$
 représente la section efficace moyenne

de fission de l'isotope j.

Les relations I.2 et III.4 conduisent à l'expression du taux de combustion en fonction de l'activité $A(t_{ir})$ du produit de fission :

$$T_c = \bar{c} \times \frac{1}{M} \times \frac{1}{\bar{y}_c} \times \frac{t_{ir}}{1 - e^{-\lambda t_{ir}}} \times A \quad (\text{III.5})$$

III.1.4 - Expression du taux de combustion dans le cas d'irradiation de durée élevée :

Les taux de fissions f_j pris séparément sont rarement constants.

Parmi les causes de leurs variations, citons :

- l'évolution de la concentration des noyaux fissiles,
- l'évolution du spectre neutronique,
- les changements éventuels de position d'irradiation.

La solution rigoureuse de l'équation (III.2) exige la connaissance précise dans le temps des différents taux de fission, condition difficile à remplir.

En fait, l'erreur commise en prenant comme solution de cette équation la moyenne des deux valeurs extrêmes, reste généralement faible :

$$\int_0^{t_{ir}} f_j(t) dt \ll \int_0^{t_{ir}} f_j(t) e^{\lambda t} dt \ll e^{\lambda t_{ir}} \int_0^{t_{ir}} f_j(t) dt$$

soit :

$$\int_0^{t_{ir}} f_j(t) e^{\lambda t} dt = \frac{F_j [1 + e^{\lambda t_{ir}}]}{2}$$

où :

$$F_j = \int_0^{t_{ir}} f_j(t) dt$$

représente le nombre de fissions de l'isotope j pendant toute l'irradiation.

La concentration du produit de fission donnée en (III.3) devient :

$$N = \sum_j y_{cj} \times F_j \times \frac{1 + e^{-\lambda t_{ir}}}{2} \quad (\text{III.6})$$

avec une erreur systématique :

$$\frac{\Delta_S N}{N} = \frac{1 - e^{-\lambda t_{ir}}}{\lambda t_{ir}}$$

Exemple : dans le cas du ^{137}Cs , produit de fission de période longue ($T_{1/2} = 30,17$ ans), l'erreur systématique est d'environ 1 % pour 1 an d'irradiation.

On peut finalement tirer, de (I.2) et (III.6), une expression simple du taux de combustion :

$$T_c = \bar{c} \times \frac{1}{M} \times \frac{1}{y_c \times \lambda} \times \frac{2}{1 + e^{-\lambda t_{ir}}} \times A \quad (\text{III.7})$$



III.2 - CHOIX DES EMETTEURS GAMMA.

Les spectres gamma de combustibles irradiés, obtenus à l'aide d'un détecteur Ge(Li), comportent après quelques jours de refroidissement, un ensemble complexe de pics (figure III.a). Ils indiquent la présence de nombreux produits de fission, parmi lesquels il faut sélectionner ceux qui vont servir à la détermination du taux de combustion.

III.2.1 - Critères du choix :

La détermination du taux de combustion à partir de l'activité des produits de fission, suppose que ces produits de fission soient représentatifs de toute l'irradiation, c'est-à-dire du nombre total de fissions créées au cours de la vie en pile du combustible. Le choix de ces produits de fission doit répondre, de ce point de vue, aux critères suivants :

- une période de décroissance longue devant la durée de l'irradiation,
- une section efficace d'absorption de neutrons négligeable (la disparition des produits de fission par capture neutronique imposerait des corrections délicates),
- des rendements de fission élevés, connus avec précision,
- des raies gamma de fortes intensités et bien séparées dans le spectre.

III.2.2 - Etude des émetteurs gamma :

Il n'existe pas de produits de fission convenant parfaitement à toutes les conditions d'irradiation et vérifiant parfaitement les critères énoncés. Néanmoins, certains produits de fission donnent des résultats satisfaisants :

- le césium 137 pour les irradiations de longue durée auxquelles correspondent généralement des taux de combustion importants,
- le ruthénium 103, le zirconium, dans le cas de combustibles peu irradiés.

Césium 137 :

Il convient particulièrement bien aux irradiations de longue durée. Par sa période élevée (30,2 ans) et sa faible section efficace de capture (0,11 barn), il est représentatif du nombre total de fission avec un minimum de corrections.

Quelques jours de refroidissement suffisent à isoler son pic à 662 keV, de la raie à 667 keV de l'iode 132.

Notons que la migration souvent importante du ^{137}Cs qui pénalisait son utilisation en examen par spectrométrie gamma, point par point, n'est plus un obstacle dans le cas de la détection en défilement continu.

La figure III.b donne un exemple de distribution du ^{137}Cs le long d'un élément combustible fortement brûlé.

La forte migration du ^{137}Cs (accumulation particulièrement forte aux deux extrémités de l'élément) n'a pas empêché l'établissement d'un bilan de détection satisfaisant. En revanche, s'il y a eu dégagement hors combustible de ce produit de fission, un bilan de sa détection n'est pas toujours possible.

Zirconium 95 :

En raison de sa période relativement courte ($T_{1/2} = 62,5$ jours), de ses rendements élevés et de l'abondance de ses pics, il est facilement détectable dès la sortie de pile et convient pour des irradiations de courtes durées avec corrections de décroissance.

Ruthénium 103 :

Facilement détecté lui aussi, il se distingue par des rendements de fission très différents pour le plutonium 239 et l'uranium 235 (respectivement 6,99 % et 3,14 %). Il convient donc à des déterminations de taux de combustion relatifs à des irradiations de durée moyenne pour lesquelles on désire connaître les sources des fissions (^{235}U , ^{239}Pu , ...).

Les caractéristiques de ces produits de fission sont présentées dans le tableau n° III.1 :

	^{95}Zr		^{103}Ru		^{137}Cs
Section de capture neutronique [4]	-		-		0,11 barn
Période radioactive [14]	62,5 jours		39,6 jours		30,17 ans
E_{γ} en keV [14]	724,2	756,72	497,09	610,31	661,59
I_{γ} / I_{β} (*)	0,44	0,54	0,90	0,056	0,851
Rendement de fission cumulé (en %) [15]					
$^{235}\text{U}_{\text{th}}$	6,46		3,14		6,26
$^{238}\text{U}_{\text{rap}}$	5,30		6,35		6,28
$^{239}\text{Pu}_{\text{th}}$	4,92		6,99		6,69
$^{241}\text{Pu}_{\text{th}}$	3,93		6,57		6,60

Tableau n° III.1 - Principales caractéristiques du ^{95}Zr , ^{103}Ru et ^{137}Cs

(*) Les caractéristiques de l'émission gamma du ^{95}Zr et du ^{103}Ru sont issues de la bibliothèque LARA [14], celle du ^{137}Cs de Nuclear Data Sheets [17].

III.3 - DETERMINATION EXPERIMENTALE DIRECTE DU TAUX DE COMBUSTION.

Nous envisagerons successivement deux cas :

- . taux de combustion élevé (supérieur à environ 10 000 MWj/T),
- . taux de combustion peu élevé (quelques milliers de MWj/T).

III.3.1 - Taux de combustion élevé :

III.3.1.1 - Principe :

La mesure de l'activité du ^{137}Cs effectuée après quelques jours de refroidissement conduit directement à la valeur du taux de combustion :

$$T_c = \bar{c} \times \frac{1}{M} \times \frac{1}{\bar{y}_{137} \times \lambda_{137}} \times \frac{2}{1 + e^{-\lambda_{137} t_{ir}}} \times A_{137} \quad (\text{III.8})$$

où

\bar{c} représente le coefficient moyen de conversion des fissions en énergie (Joule/fission)

M la masse volumique du combustible en tonne par cm^3 (parfois exprimée en masse des atomes lourds par cm^3 de combustible)

λ_{137} la constante de décroissance radioactive du ^{137}Cs :
 $7,285 \cdot 10^{-10} \text{ s}^{-1}$

A_{137} l'activité mesurée du ^{137}Cs en désintégrations par seconde par cm³ de combustible (dont la détermination s'effectue conformément à la démarche décrite au chapitre II)

\bar{y}_{137} le rendement de fission moyen du ^{137}Cs . Il s'exprime rigoureusement par :

$$\bar{y}_{137} = \frac{\sum_j y_j}{\sum_j F_j} \times \frac{F_j}{\sum_j F_j}$$

avec $\frac{F_j}{\sum_j F_j}$: pourcentages respectifs des fissions des différents isotopes

Remarque :

Une estimation précise de ces derniers pourcentages n'est pas indispensable pour le calcul de \bar{y}_{137} . Les rendements de fission du ^{137}Cs pour l'uranium 235 et le plutonium 239 (qui sont généralement les principales sources de fission) sont suffisamment proches (respectivement 6,26 % et 6,69 %) pour ne pas entraîner d'incertitude trop grande sur la valeur du rendement de fission moyen \bar{y}_{137} .

III.3.1.2 - Résultats expérimentaux :

Nous avons appliqué cette méthode (avec succès) aux combustibles des différentes filières, irradiés dans OSIRIS.

A titre d'exemple, nous présentons les résultats obtenus sur un élément combustible de la filière à neutrons rapides.

A) Données :

Le combustible examiné en spectrométrie gamma est un oxyde mixte (U-Pu) O₂ dont les caractéristiques initiales sont les suivantes :

- composition en isotopes fissiles :

$$^{235}\text{U} : 30 \%$$

$$^{239}\text{Pu} : 70 \%$$

On en déduit la valeur de $\bar{\tau}$ et \bar{y}_{137} : $\bar{c} = 3,73 \cdot 10^{-22}$ MWj/fission
 $\bar{y} = 6,62 \%$

- densité : 11 g/cm³

La durée de l'irradiation est d'environ 2 ans.

B) Résultats :

On donne, en échelle linéaire, les répartitions longitudinales du ^{140}La (1 596 keV) et du ^{137}Cs (661 keV) (figures 6 et 7).

On notera la remontée d'activité du ^{137}Cs aux deux extrémités du combustible, due à la forte migration de ce produit de fission dans le combustible.

a) comptage du ^{137}Cs sur tout le combustible : après traitement des spectres par le programme JONQUE, nous obtenons la valeur moyenne du comptage du ^{137}Cs sur le combustible :

$$\bar{S}_{137} = 661 \text{ cps/mn (coups/minute)}$$

b) courbe de rendement : nous avons tracé la courbe de rendement (figure 8) à partir des taux de comptage des rates du ^{140}La .

L'expression du rendement relatif est obtenu par la méthode exposée au Chapitre II :

$$\text{Log } \rho = - 0,42 X^2 + 0,71 X$$

$$\text{avec } X = \text{Log } \frac{1\,332}{E}$$

On en tire alors les rapports de rendement entre l'énergie d'émission à 661 keV (^{137}Cs) et l'énergie d'émission à 1 332 keV (^{60}Co) :

$$\rho = 1,33$$

c) étalonnage en valeur absolue :

- le recalage en valeur absolue est réalisé à l'aide d'une source-étalon de ^{60}Co d'activité A :

$$A_{60} = 1,81.10^{12} \text{ d.p.s./cm}^3$$

Cette source a été comptée sur le banc de spectrométrie gamma d'OSIRIS, dans les mêmes conditions que le combustible, c'est-à-dire, avec la même fenêtre horizontale de collimation :

$$S_{60} = 0,227 \text{ cps/mn}$$

- le rapport d'atténuation gamma entre l'expérience et la source (φ_{60} / φ) a été calculé, pour une énergie de 1 332 keV, à l'aide du programme MERCURE IV :

$$\varphi_{60} / \varphi = 1,34$$

Des données précédentes, on tire l'activité moyenne du ^{137}Cs sur tout le combustible, à partir de la relation :

$$\bar{A}_{137} = \frac{\bar{S}_{137}}{S_{60}} \times \frac{1}{\rho \times I} \times \frac{\varphi_{60}}{\varphi} \times \frac{V_{\text{source}}}{V_{\text{combustible}}} \times A_{60}$$

où I représente l'intensité absolue de la raie gamma à 661 keV du ^{137}Cs .
soit : 0,851

$\frac{V_{\text{source}}}{V_{\text{combustible}}}$ désigne le rapport des volumes source et combustible détectés
soit ici : 0,903.

On obtient :

$$\bar{A}_{137} = 1,39.10^{11} \text{ d.p.s./cm}^3$$

d) valeur du taux de combustion : de cette activité, on déduit la valeur moyenne de la combustion massique exprimée en MWj/tonne (U-Pu)O₂, pour l'ensemble du combustible :

$$T_c \approx 103\,000 \text{ MWj/tonne (U-Pu) O}_2$$

e) calcul d'erreur : le taux de combustion donné par la relation (III. 8) est le produit de variables indépendantes. L'erreur relative sur le taux de combustion peut donc s'exprimer ainsi :

$$\frac{\Delta T_c}{T_c} = \sqrt{\left[\frac{\Delta \bar{c}}{\bar{c}}\right]^2 + \left[\frac{\Delta y}{\bar{y}}\right]^2 + \left[\frac{\Delta \bar{S}_{137}}{S_{137}}\right]^2 + \left[\frac{\Delta k}{k}\right]^2 + \left[\frac{\Delta \rho}{\rho}\right]^2 + \left[\frac{\Delta \lambda_{60}}{\lambda_{60}}\right]^2}$$

Expression où ne figurent que les facteurs susceptibles d'introduire des erreurs significatives.

A cette erreur statistique, il convient de rajouter l'erreur systématique liée à la décroissance radioactive du ¹³⁷Cs (voir paragraphe III.1.4) :

$$\frac{\Delta_s T_c}{T_c} = \frac{1 - e^{-\lambda t_{ir}}}{1 + e^{-\lambda t_{ir}}}$$

On trouve finalement :

$$\frac{\Delta T_c}{T_c} = 7 \%$$

III.3.2 - Taux de combustion peu élevé :

III.3.2.1 - Principe :

Dans le cas de taux de combustion relativement faibles (quelques milliers de MWj/tonne), le ^{137}Cs n'est pas produit en quantité suffisante pour permettre une bonne détection après quelques jours de refroidissement.

La détermination du taux de combustion s'effectue à partir de l'activité de produits de fission de période plus courte mais représentatifs de toute l'irradiation (par exemple : le ^{103}Ru , le ^{95}Zr).

Notre démarche associe mesures et calculs :

- nous déterminons d'abord l'activité des produits de fission détectés,
- parallèlement, nous effectuons un calcul de création de produits de fission à l'aide du programme PICFEE II pour relier l'activité des produits de fission détectés à leur formation et à leur disparition (en tenant compte, donc, des temps d'irradiation et de refroidissement).

Les données de ce calcul sont :

- les niveaux relatifs de puissance par palier d'irradiation (obtenus généralement par mesure de température),
- la durée des différents paliers,
- la répartition des différentes sources de fission (^{235}U , ^{239}Pu)

Quand ces pourcentages ne sont pas précisément connus (variation sensible de la composition isotopique du combustible par rapport à son état initial, ou impossibilité de connaître les valeurs exactes des sections effectives de fission), il est possible de déterminer ces répartitions par comparaison des activités mesurées de deux produits de fission (^{235}U , ^{239}Pu , ...) aux rendements suffisamment différents. Par exemple, le couple ^{95}Zr et ^{103}Ru conduit à un système d'équations

(expressions de leur activité en fonction du nombre des fissions ^{235}U et ^{239}Pu dont la résolution permet de déterminer les parts respectives de fissions ^{235}U et ^{239}Pu créées dans le combustible.

Finalement, c'est le rapport entre les valeurs MESUREES et les valeurs CALCULEES des activités des produits de fission étudiés qui fixe les niveaux réels de puissance et par conséquent le taux de combustion.

$$T_c = \frac{A}{A^*} \times T_c^* \quad (\text{III. 9})$$

où **A** représente l'activité mesurée du produit de fission
A* l'activité calculée du produit de fission
T* le taux de combustion relatif, estimé à partir des niveaux relatifs de puissance :

$$T_c^* = \frac{t_{ir} \times \sum_{k=1}^{n_c} P_k^*}{M}$$

avec t_{ir} : durée d'un cycle d'irradiation

P_k^* : puissance relative dégagée par le combustible pendant le $k^{\text{ième}}$ cycle

n_c : nombre de cycle

III.3.2.2 - Résultats expérimentaux :

Nous donnons les résultats obtenus sur un combustible du type "caramel" de la filière à eau légère :

A) Données :

Il s'agit d'un élément combustible constitué d'un empilement de plaquettes rectangulaires d'oxyde d'uranium. Le combustible répond aux caractéristiques suivantes :

- composition en isotopes fissiles : $^{235}\text{U} = 10 \%$
- densité : 9 g/cm^3 .

B) Résultats :

a) Après l'examen en défilement continu et traitement par le programme JONQUE, nous obtenons :

- les répartitions longitudinales du ^{140}La (1 596 keV), ^{95}Zr (756 keV), ^{103}Ru (766 keV), (figures 9, 10 et 11).

- les valeurs moyennes des taux de comptage des produits de fission étudiés sur tout le combustible :

$$\bar{S}_{95} = 4\,358 \text{ cps/mn}$$

$$\bar{S}_{103} = 4\,990 \text{ cps/mn}$$

b) courbe de rendement (figure 8c) : on établit l'expression du rendement relatif, à partir des taux de comptage des différentes raies du ^{140}La :

$$\text{Log } \rho = -0,06 X^2 + 0,393 X$$

$$\text{avec } X = \text{Log } \frac{1\,332}{E}$$

On en tire, pour les deux produits de fission retenus (^{103}Ru , ^{95}Zr), les rapports de rendement entre les énergies d'émission de leurs raies (respectivement 497 keV et 756 keV) et celle d'émission du ^{60}Co (1 332 keV) :

$$P_{95} = 1,23$$

$$P_{103} = 1,39$$

c) étalonnage en valeur absolue : on compte une source-étalon de ^{60}Co dans les mêmes conditions que le combustible :

$$S_{60} = 4\,190 \text{ cps/mn.}$$

L'activité de cette source était de $1,59 \cdot 10^{12}$ d. p. s/cm³ au moment de la mesure.

Le rapport d'atténuation gamma entre l'expérience et la source a été calculé à l'aide du programme MERCURE IV :

$$\varphi_{60} / \varphi = 1,24.$$

d) valeurs des activités mesurées : des résultats précédents, nous pouvons déterminer les activités mesurées des deux produits de fission étudiés :

$$\bar{A}_{95} = 8,03 \cdot 10^{11} \text{ d. p. s/cm}^3$$

$$\bar{A}_{103} = 4,88 \cdot 10^{11} \text{ d. p. s/cm}^3$$

e) calcul de création de produits de fission :

- Données : le calcul de création de produits de fission est effectué à l'aide du programme PICFEE II.

Il est réalisé pour une puissance linéaire arbitraire de 1 000 W/cm³ sur la base des paliers de fonctionnement donnés par l'expérimentateur.

On considère pour ces calculs que les fissions produites proviennent toutes de l'uranium 235 (un calcul préliminaire a montré que la part des fissions du plutonium 239 était inférieure à 2 %).

- Résultats : on détermine ainsi aux temps de refroidissement correspondant aux conditions d'examen du combustible, les valeurs d'activité des deux produits de fission étudiés :

$$A^*_{95} = 6,41 \cdot 10^{11} \text{ d. p. s/cm}^3$$

$$A^*_{103} = 3,98 \cdot 10^{11} \text{ d. p. s/cm}^3$$

f) détermination du taux de combustion : le taux de combustion relatif est estimé à partir du niveau relatif de puissance et de la durée de l'irradiation :

$$T = 5\,350 \text{ MWj/tonne d'U}$$

La comparaison entre valeurs mesurées et calculées des activités du ^{95}Zr et du ^{103}Ru donne :

$$\left(\frac{A}{A^*}\right)_{95} = 1,25$$

$$\left(\frac{A}{A^*}\right)_{103} = 1,23.$$

L'écart entre valeurs mesurées et calculées conduit au taux de combustion réel :

$$T \simeq 6\,630 \text{ MWj/tonne d'U}$$

avec une erreur relative d'environ 5 %.



C H A P I T R E I V

DETERMINATION DE LA PUISSANCE D'IRRADIATION PAR

SPECTROMETRIE GAMMA EN PILE

Dans ce chapitre, nous exposons tour à tour :

- le principe de la méthode de détermination de puissance par spectrométrie gamma,**
- la sélection des produits de fission utilisés,**
- la mise en oeuvre de cette méthode.**

IV.1 - PRINCIPE DE LA METHODE.

A la fin d'un cycle du réacteur OSIRIS, les produits de fission à vie courte créés pendant l'irradiation (dont la période est inférieure à quelques jours) sont à l'équilibre, c'est-à-dire que leur formation par fission ou filiation radioactive équilibre leur disparition par décroissance. L'activité de ces radionuclides est donc directement liée au taux de fissions. Sa détermination conduit ainsi à la puissance de l'irradiation (généralement constante pendant un cycle de réacteur).

Dans certains cas, cette méthode s'avère difficile à mettre en oeuvre. En particulier, le bruit de fond important créé par l'émission gamma de produits d'activation peut empêcher les mesures d'activité des produits de fission : par exemple, le ^{24}Na , formé par activation du fluide caloporteur (mélange eutectique Na K ou sodium métallique).

Cette difficulté peut être contournée en procédant à une réirradiation de courte durée du combustible. Les produits de fission à période courte ainsi créés (période allant de quelques dizaines de secondes à plusieurs dizaines de minutes) sont directement liés à la quantité d'isotopes fissiles restants (à la fin de l'irradiation). Leurs activités dépendent donc d'un nombre d'atomes fissiles restants, du flux de neutrons et de la durée de la réirradiation. On déduit du comptage de ces produits de fission, les pourcentages respectifs des fissions et la puissance de la réirradiation. On peut alors procéder à des comparaisons avec les valeurs de puissance pendant l'irradiation, données par les moniteurs de l'expérience (voir paragraphe III.2.2).



IV.2 - SELECTION DES PRODUITS DE FISSION.

La compilation de bibliothèques de données nucléaires [14], [15] et [16] a permis de choisir un ensemble de produits de fission à vie courte susceptibles de convenir à la détermination de puissance. Afin de préciser notre choix, une campagne d'irradiation de combustibles nucléaires a suivi cette première sélection.

IV.2.1 - Observation et identification des produits de fission à vie courte :

Pour cette étude, il nous a paru avantageux d'utiliser des pastilles vierges d'oxyde d'uranium :

- . facilité de manipulation,
- . spectre gamma des produits de fission formés moins complexe que sur des échantillons ayant déjà subi des irradiations de longue durée.

A cet effet, un dispositif spécial de spectrométrie gamma a été installé sur le bord de la piscine du réacteur ISIS (maquette neutronique d'OSIRIS (annexe IV))

On a pu bénéficier ainsi :

- . d'une part, de la souplesse de fonctionnement d'ISIS,
- . d'autre part, d'un transfert rapide entre emplacement d'irradiation et position d'observation (une dizaine de secondes environ).

Au cours de cette étude, ont été identifiés sans ambiguïté, les produits de fissions créés pendant des irradiations de courte durée (de quelques dizaines de secondes à plusieurs dizaines de minutes), avec vérification de leurs différentes caractéristiques (période de décroissance radioactive, énergie et intensité des raies gamma).

On peut regrouper les produits de fission observés en deux familles principales :

- . les produits de période très courte, par exemple l' ^{136}I (T 1/2 = 85 s) et le ^{94}Sr (T 1/2 = 1,3 mn),
- . les produits de période courte, tels que : ^{89}Rb (T 1/2 = 15 mn), ^{138}Cs (T 1/2 = 38 mn), ^{134}I (T 1/2 = 52 mn), ^{92}Sr (T 1/2 = 2,7 h), ^{88}Kr (T 1/2 = 2,8 h).

C'est vers le deuxième groupe que l'on s'est tourné en raison des conditions d'expérimentation d'OSIRIS ; quelques minutes étant nécessaires au transfert du dispositif expérimental sur le banc de mesure.

IV.2.2 - Les produits de fission sélectionnés :

De ces différents produits de fission détectés, on a retenu essentiellement :

l'iode 134 :

qui donne le meilleur taux de comptage. De ces deux raies principales (847 et 884 keV), nous avons sélectionné la deuxième qui, bien que moins intense (68 % contre 100 % pour la première) apparaît pure (alors que celle à 847 keV interfère avec d'autres raies, comme celle du ^{88}Kr).

le strontium 92 :

dont la raie à 1 384 keV est bien isolée et relativement intense. De plus, le ^{92}Sr présente des rendements de fission cumulés ^{235}U et ^{239}Pu nettement différents (respectivement 5,95 % et 2,99 %). Cette caractéristique peut permettre de déterminer les parts respectives des fissions ^{235}U et ^{239}Pu .

Les principales caractéristiques de ces deux produits de fission sont présentées dans le tableau IV.1 :

	^{134}I		^{92}Sr
E_{γ} en keV [14]	846	884	1 384
I_{γ} / I_{β}	1	0,681	0,857
Période radioactive	52,8 mn		2,71 h
Rendement de fission cumulé en % [15]			
$^{235}\text{U}_{\text{th}}$	7,61		5,95
$^{238}\text{U}_{\text{r}}$	7,09		4,10
$^{239}\text{Pu}_{\text{th}}$	7,29		2,99
$^{241}\text{Pu}_{\text{th}}$	7,97		2,26

Tableau n° IV.1



IV.3 - LES CONDITIONS EXPERIMENTALES LIEES A L'IRRADIATION.

Le choix effectué au paragraphe précédent permet de fixer la durée de l'examen spectrométrique .

Compte tenu des périodes de l' ^{134}I et du ^{92}Sr (respectivement 52,8 mn et 2,7 h), l'examen en défilement continu commence le plus tôt possible après la fin de l'irradiation (ou de la réirradiation) et dure environ 2 à 3 heures (sur l'ensemble du combustible).

L'expérience montre que :

- un examen d'une durée plus courte donne une précision statistique insuffisante sur les taux de comptage,
- la poursuite au-delà de cette période n'améliore pas les résultats, du fait de la disparition importante de ces produits de fission par décroissance radioactive.

Dans le cas où une réirradiation est nécessaire, on choisit le temps de refroidissement entre l'irradiation et la réirradiation, de manière à ce que :

- l'activité parasite qui nous gênait ait suffisamment décru,
- les produits de fission à vie courte provenant de l'irradiation (en particulier ^{134}I et ^{92}Sr) aient complètement disparu.

Quelques dizaines d'heures suffisent largement avant de procéder à la réirradiation. Aussi nous mettons généralement à profit l'arrêt du réacteur pour laisser "refroidir" le combustible, la réirradiation étant alors réalisée au début du nouveau cycle d'OSIRIS. La durée de la réirradiation doit permettre une bonne détection des produits de fission que l'on veut observer :

- trop courte (inférieure à une heure), elle ne produirait pas assez d' ^{134}I et de ^{92}Sr ,
- trop longue, elle formerait en plus des produits de fission à vie courte, des produits de période plus élevée dont l'émission gamma gênerait l'observation de l' ^{134}I et du ^{92}Sr .

L'expérience montre qu'une réirradiation d'environ deux heures constitue un bon compromis.



IV.4 - DETERMINATION DE LA PUISSANCE D'IRRADIATION.

IV.4.1 - Méthode :

On peut considérer que les activités mesurées de l' ^{134}I et du ^{92}Sr (respectivement A_{134} et A_{92}) sont fonction des taux de fissions d'uranium 235 et de plutonium 239 (c'est le cas pour les combustibles à uranium naturel ou enrichi et les combustibles mixtes (U. Pu)):

$$\left. \begin{aligned} A_{134} &= \alpha_1 f_5 + \beta_1 f_9 \\ A_{92} &= \alpha_2 f_5 + \beta_2 f_9 \end{aligned} \right\} \quad (\text{IV.1})$$

où f_5 et f_9 désignent les taux de fissions ^{235}U et ^{239}Pu .

α et β sont des coefficients fonction des rendements de fissions respectifs et des données liées aux temps de refroidissement (c'est-à-dire où intervient la période de décroissance du radionuclide correspondant).
Par exemple : dans le cas simple du ^{92}Sr produit directement par fission, au cours d'une irradiation à puissance constante, ces coefficients s'écrivent :

$$\alpha_2 = y_5 \times k$$

$$\beta_2 = y_9 \times k$$

où y_5 représente le rendement de fission du ^{92}Sr pour l' ^{235}U

y_9 représente le rendement de fission du ^{92}Sr pour le ^{239}Pu

$$k = (1 - e^{-\lambda t_{ir}}) \times \frac{e^{-\lambda t_r}}{m} \times \frac{1 + e^{-2\lambda\tau}}{1 - e^{-2\lambda\tau}} \times \left[1 + 2e^{-(m-1)\lambda\tau} - \dots \right]$$

avec t_{ir} : durée de l'irradiation

t_r : temps compris entre la fin de l'irradiation et le début du comptage

τ : durée d'un demi-cycle

m : nombre de demi-cycle

λ : période de décroissance radioactive du ^{92}Sr

Les valeurs des coefficients α et β pour les deux produits de fission considérés, sont calculées à l'aide du programme PICFEE, à partir de l'histogramme de puissance (relative) et des temps de refroidissement donnés.

On détermine par mesure spectrométrique les activités A_{134} et A_{92} par la méthode décrite en II.3. Du système IV.1, on tire le rapport des taux de fissions ^{235}U ou taux de fissions ^{239}Pu , fissions produites pendant l'irradiation ou la réirradiation :

$$\frac{f_5}{f_9} = \frac{\beta_1 / \beta_2 - \left(\frac{A_{134}}{A_{92}} \right)}{\alpha_1 / \beta_2 \left(\frac{A_{134}}{A_{92}} \right) - \alpha_1 / \beta_2} \quad (\text{IV.2})$$

avec :

$$\frac{A_{134}}{A_{92}} = \frac{\bar{S}_{134}}{P_{134} \times I_{134}} \times \frac{P_{92} \times I_{92}}{\bar{S}_{92}}$$

Sur la base des parts respectives de fission ainsi déterminée, des temps de refroidissement obtenus et de l'histogramme de puissance (relative), on effectue un nouveau calcul de création de produits de fission à l'aide du programme PICFEE. La valeur de la puissance de l'irradiation P se déduit de la comparaison entre valeurs

mesurées A et valeurs calculées A* des activités de l' ^{134}I et du ^{92}Sr :

$$\frac{P}{P^*} = \left(\frac{A}{A^*} \right)_{134} = \left(\frac{A}{A^*} \right)_{92} \quad (\text{IV.3})$$

IV.4.2 - Résultats expérimentaux :

Nous rapportons les résultats relatifs à l'examen gammamétrique d'un élément combustible de la filière à neutrons rapides, irradié à OSIRIS.

La puissance dissipée dans le combustible a été déterminée successivement par les deux méthodes, après l'irradiation et à la suite d'une réirradiation.

On trouvera sur courbes (fig. 13, 14 et 15) les répartitions longitudinales du ^{140}La , ^{134}I , ^{92}Sr .

Détermination des valeurs absolues des activités mesurées :

Les valeurs des activités mesurées de l' ^{134}I et du ^{92}Sr , exprimées en d.p.s./cm de combustible, sont données dans le tableau ci-dessous :

	①	②
A_{134}	$9,52 \cdot 10^{11}$	$2,54 \cdot 10^{11}$
A_{92}	$2,71 \cdot 10^{11}$	$1,39 \cdot 10^{11}$

- ① désigne les mesures après irradiation
 ② désigne les mesures après réirradiation

Proportions de fissions ^{235}U et ^{239}Pu :

Les coefficients α et β du système IV.1 sont calculés à l'aide du programme PICFEE :

	(1)	(2)
α_1 / α_2	0,864	1,189
β_1 / β_2	1,629	2,241
α_1 / β_1	1,074	2,395
α_2 / β_2	2,024	2,014

Compte tenu des valeurs de A_{134} et A_{92} , on tire de la relation IV.2 les proportions respectives de fissions ^{235}U et ^{239}Pu :

Isotope fissile	(1)	(2)
^{235}U	27 %	25 %
^{239}Pu	73 %	75 %

Calcul de création de produits de fissions :

A partir des proportions de fission déterminées précédemment, on peut calculer les activités de l' ^{134}I et du ^{92}Sr . Ce calcul est réalisé pour une puissance linéaire de 510 W/cm (valeur estimée par l'expérimentateur) :

	(1)	(2)
A^*_{134}	$4,41 \cdot 10^{11}$	$3,21 \cdot 10^{11}$
A^*_{92}	$3,44 \cdot 10^{11}$	$1,77 \cdot 10^{11}$

Détermination de la puissance linéaire :

La valeur de la puissance linéaire d'irradiation se déduit de la comparaison entre valeurs mesurées et valeurs calculées des activités de l' ^{134}I et du ^{92}Sr :

	①		②	
	^{134}I	^{92}Sr	^{134}I	^{92}Sr
P / P^*	0,80	0,80	0,79	0,79
P	405 W/cm	405 W/cm	401 W/cm	401 W/cm

Calcul de l'erreur :

Dans l'expression IV.3, donnant la puissance de l'irradiation, les variables P^* et A^* sont des variables dépendantes. L'erreur relative sur la puissance dégagée peut donc s'exprimer ainsi :

$$\frac{\Delta P}{P} = \sqrt{\left[\frac{\Delta A}{A}\right]^2 + \left[\frac{\Delta A^*}{A^*}\right]^2 + \left[\frac{\Delta P^*}{P^*}\right]^2 - 2 \frac{\Delta A^*}{A^*} \times \frac{\Delta P^*}{P^*}}$$

avec :

$$\left[\frac{\Delta A}{A}\right]^2 = \left[\frac{\Delta \bar{S}}{\bar{S}}\right]^2 + \left[\frac{\Delta K}{K}\right]^2 + \left[\frac{\Delta P}{P}\right]^2 + \left[\frac{A_{60}}{A_{60}}\right]^2$$

$$\left[\frac{\Delta A^*}{A^*}\right]^2 = \frac{\sum_j \left([\Delta y_j \times P_j]^2 + [y_j \Delta P_j]^2 \right) + 2 \prod_j \left(\sqrt{(\Delta y_j \times P_j)^2 + (y_j \Delta P_j)^2} \right)}{\left[\sum_j y_j P_j \right]^2}$$

où P_j représente le pourcentage des fissions de l'isotope j :

$$P_j = \frac{f_j}{\sum_j f_j}$$

$$\left[\frac{\Delta P^*}{P^*}\right]^2 = \frac{\sum_j \left([\Delta c_j \times P_j]^2 + [c_j \Delta P_j]^2 \right) + 2 \prod_j \left(\sqrt{(\Delta c_j \times P_j)^2 + (c_j \times \Delta P_j)^2} \right)}{\left[\sum_j c_j P_j \right]^2}$$

soit, tout calcul effectué :

$$\frac{\Delta P}{P} \approx 5 \%$$

Discussion des résultats :

- On remarque une bonne concordance entre les résultats obtenus par les deux méthodes.
- L'écart de 20 % avec l'expérimentateur peut ainsi conduire à un réajustement dans le programme de mesure jusqu'alors suivi avec une assez forte imprécision.



C O N C L U S I O N

Au cours de cette étude, nous avons mis au point une méthode expérimentale, non destructive, de détermination de taux de combustion et de puissance par spectrométrie gamma en pile.

Les avantages de la technique spectrométrique, associés à la simplicité de la démarche expérimentale, confèrent à ces déterminations rapidité et précision.

Ainsi, la mesure de l'activité du césium 137, du zirconium 95 ou du ruthénium 103, conduit à l'estimation du taux de combustion avec une précision comprise entre 5 % et 10 %.

A partir des activités mesurées de l'iode 134 et du strontium 92, on évalue la puissance de l'irradiation avec une précision du même ordre de grandeur.

Depuis la mise au point de cette méthode, se sont succédés de nombreux examens sur des dispositifs divers, représentatifs de la plupart des filières et de différents types de combustibles, et conduisant tous à des résultats satisfaisants.

L'intérêt pour une telle technique s'en voit, de ce fait, renforcé, notamment en vue du développement d'installations de ce type sur les réacteurs de puissance.

Aussi, en terminant cette étude, pensons-nous avoir apporté une contribution utile aux efforts développés dans le cadre du contrôle et de l'économie du combustible nucléaire.

*

*

*

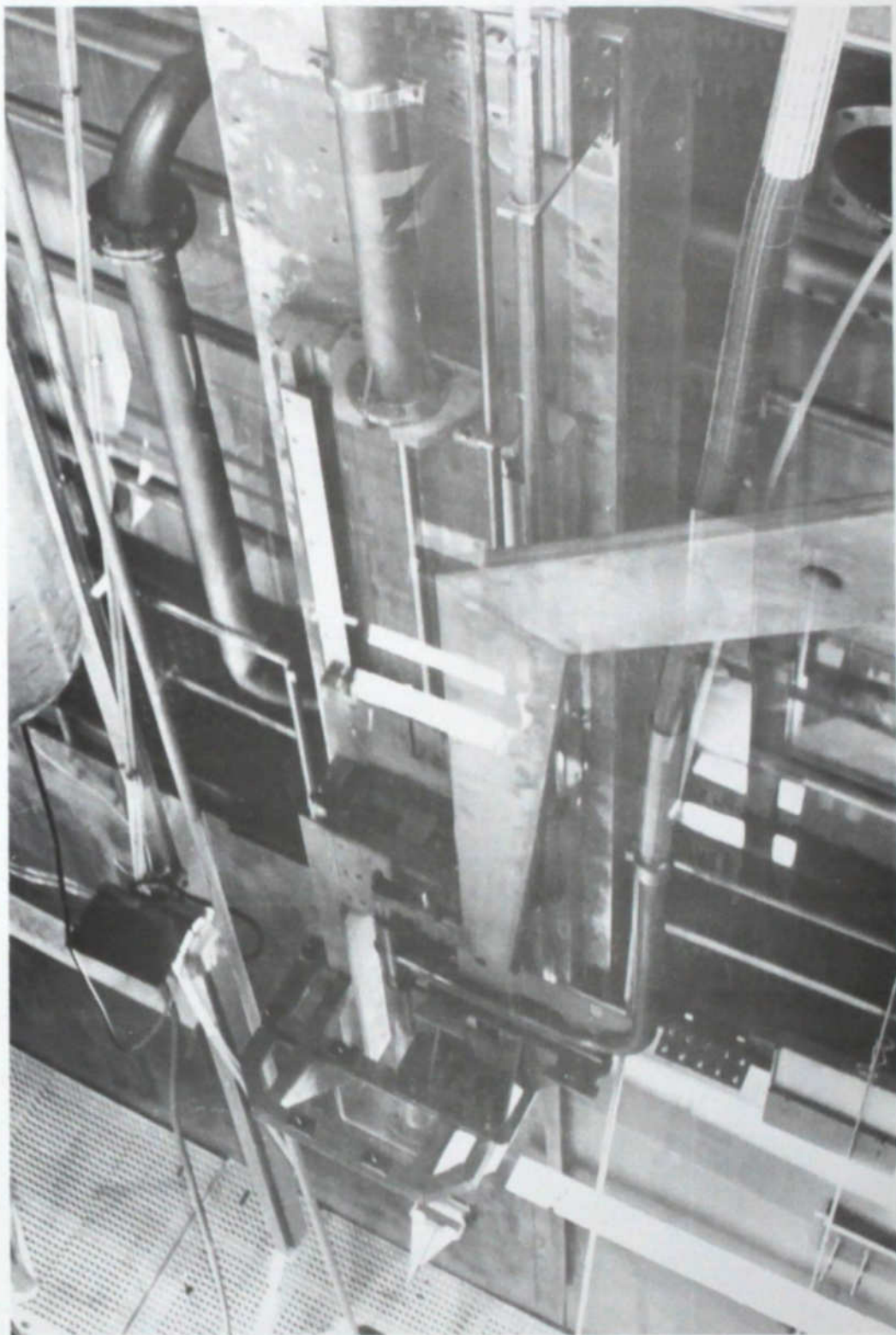


Figure n°1
Installation de spectrométrie gamma d'OSIRIS
- SACLAY -

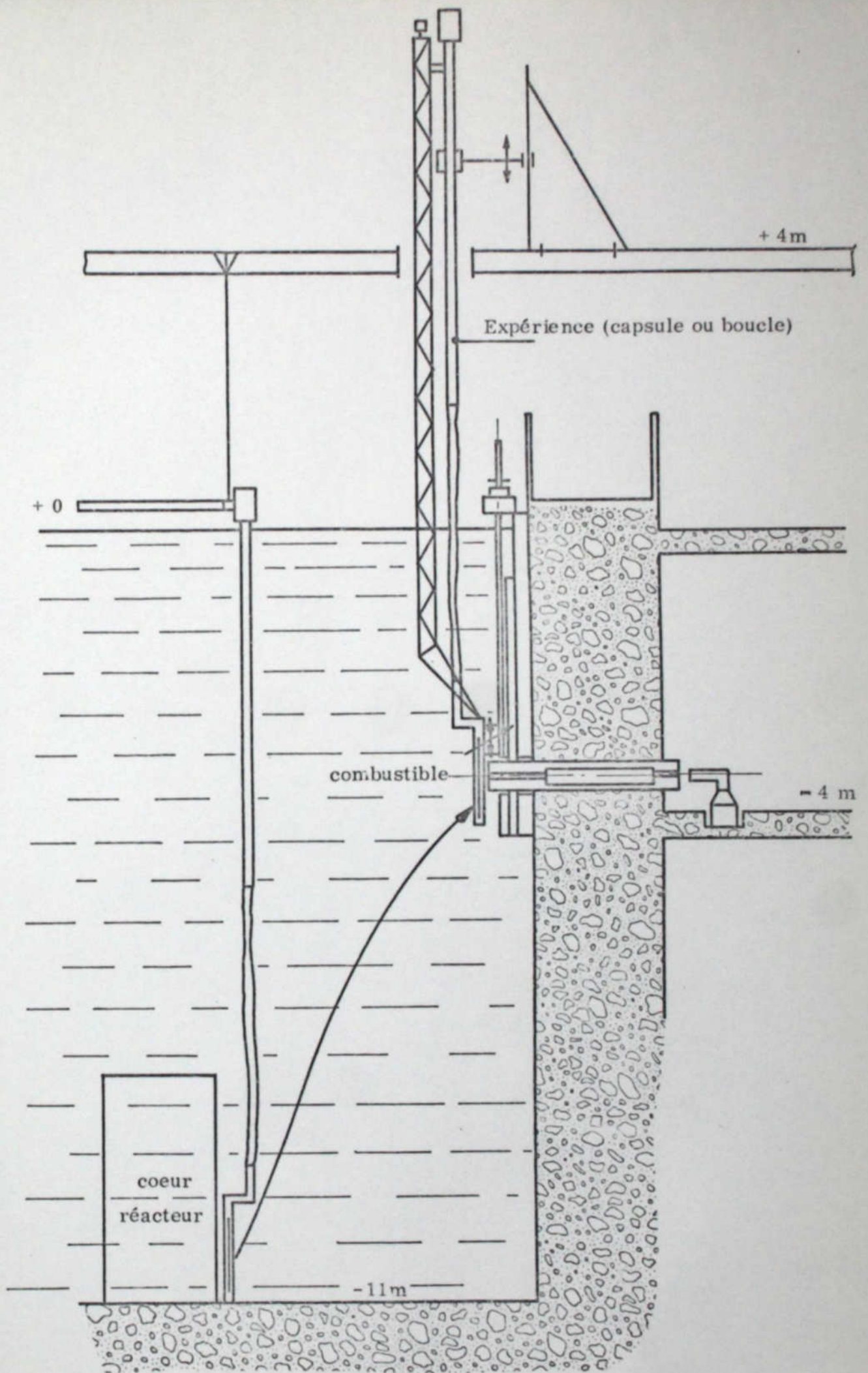
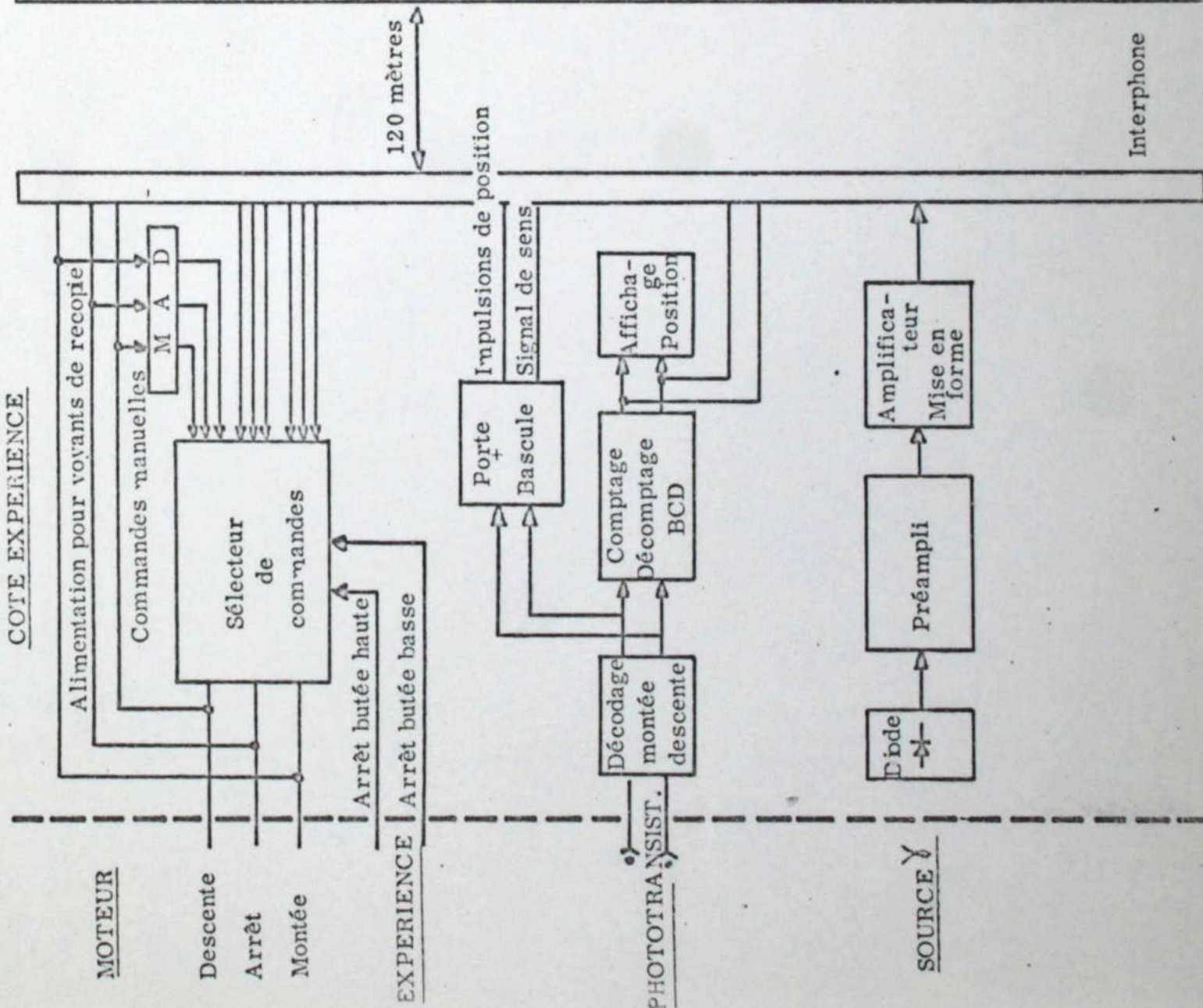


Figure n° 2

Schéma de l'installation de spectrométrie gamma d'OSIRIS à SACLAY

COTE EXPERIENCE



COTE CALCULATEUR

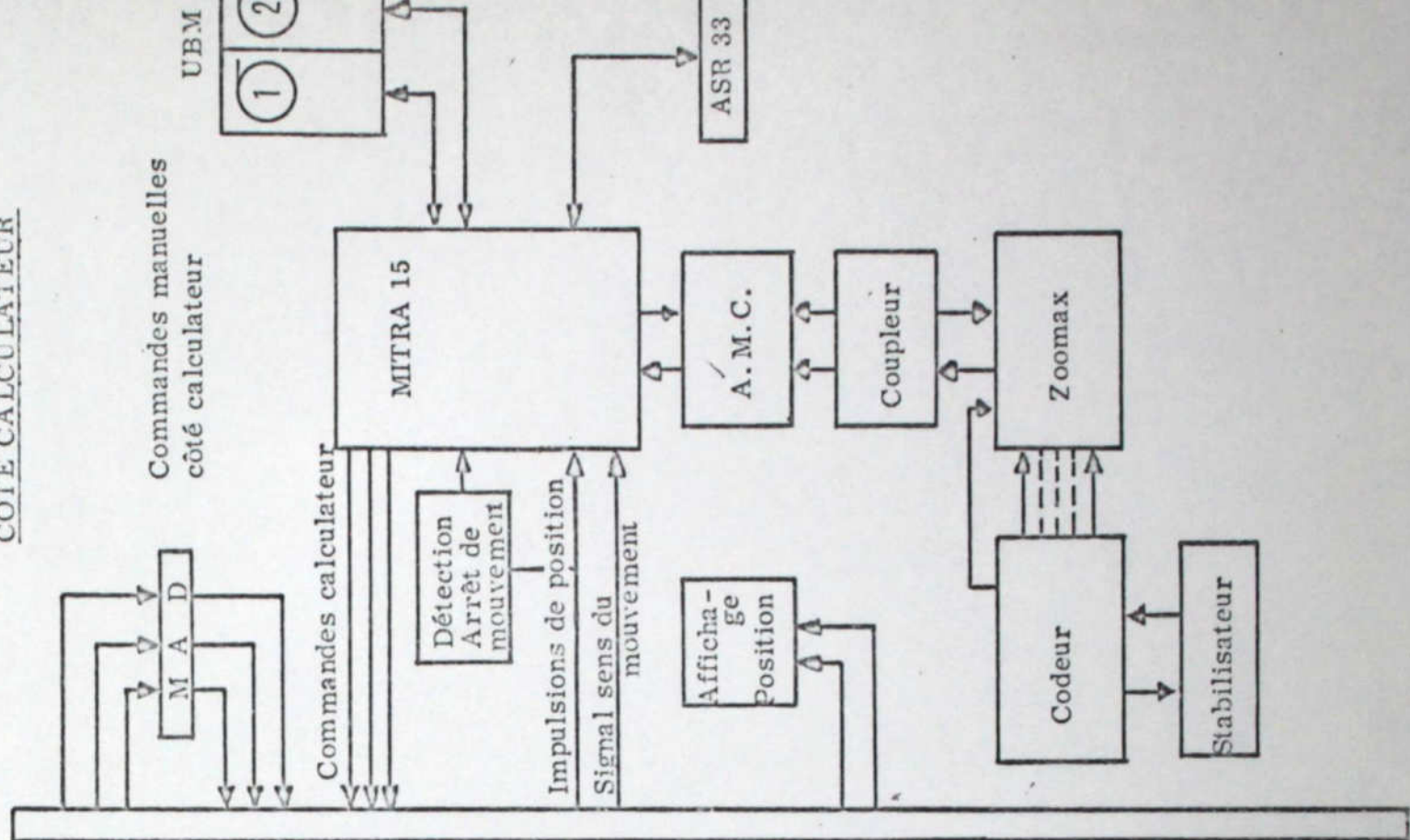


Figure n° 3 - Installation de spectrométrie gamma d'OSIRIS - Chaîne électronique

Taux de comptage
(en impulsion/minute)

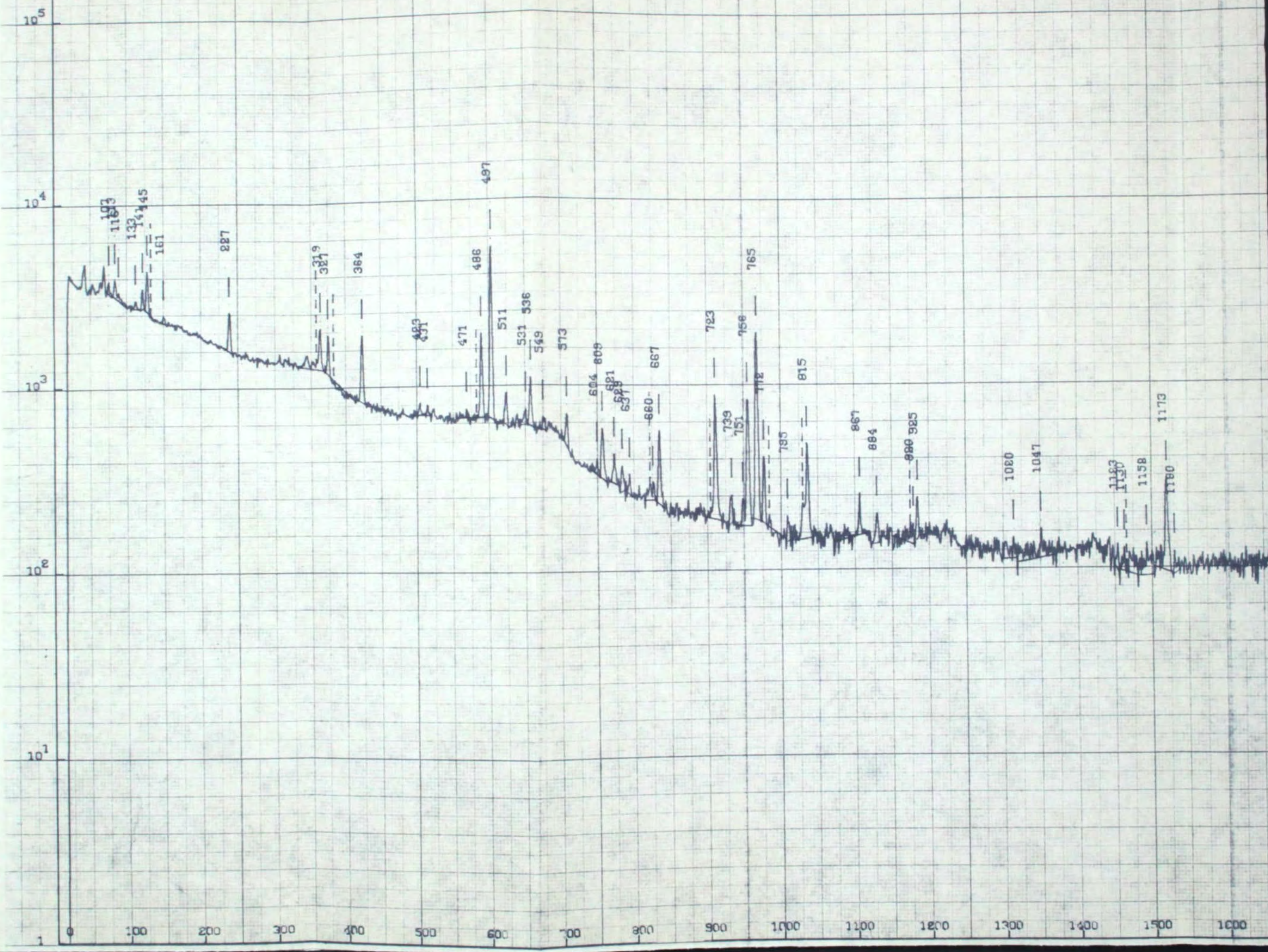
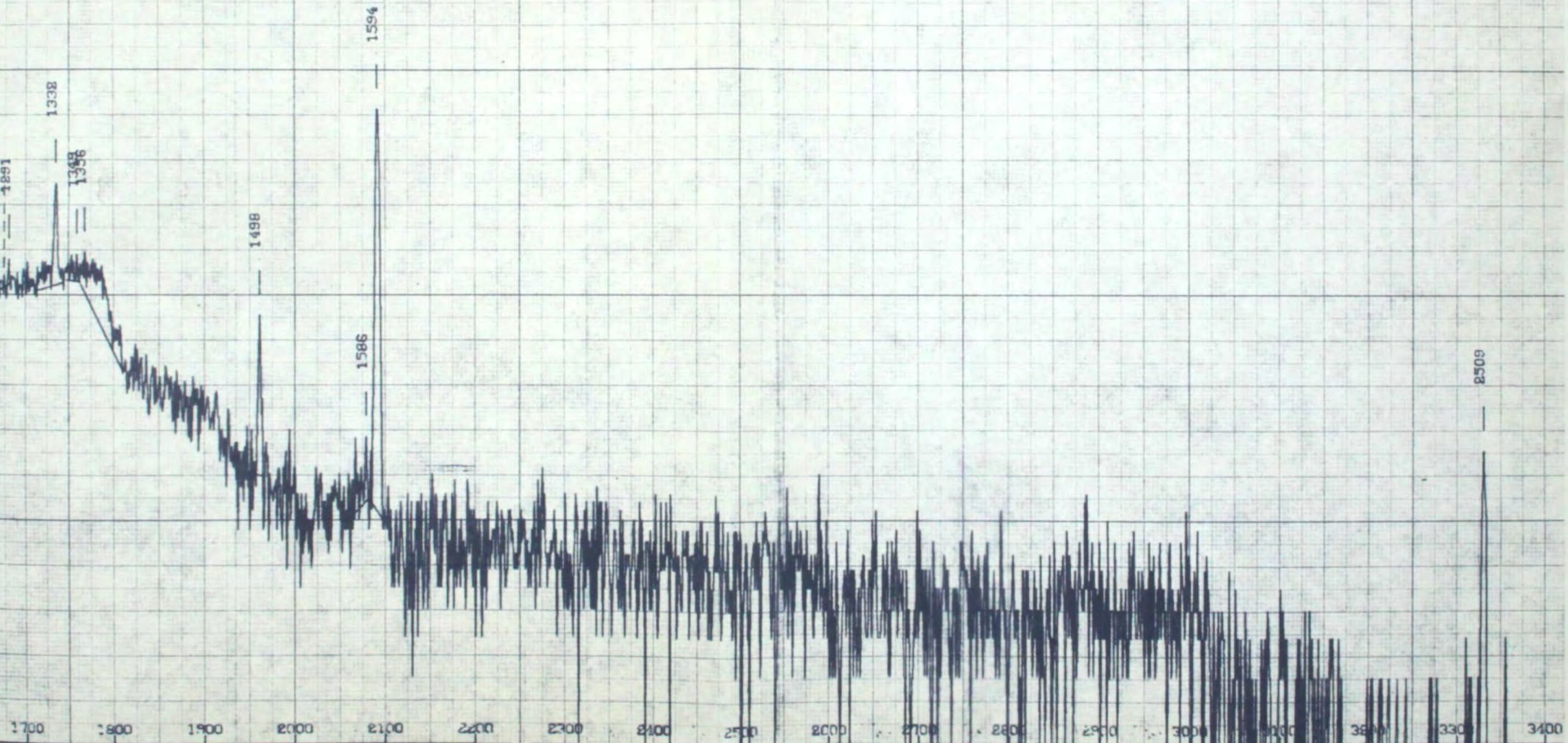


Figure 4 : Spectre gamma des produits de fission
après 28 heures de refroidissement



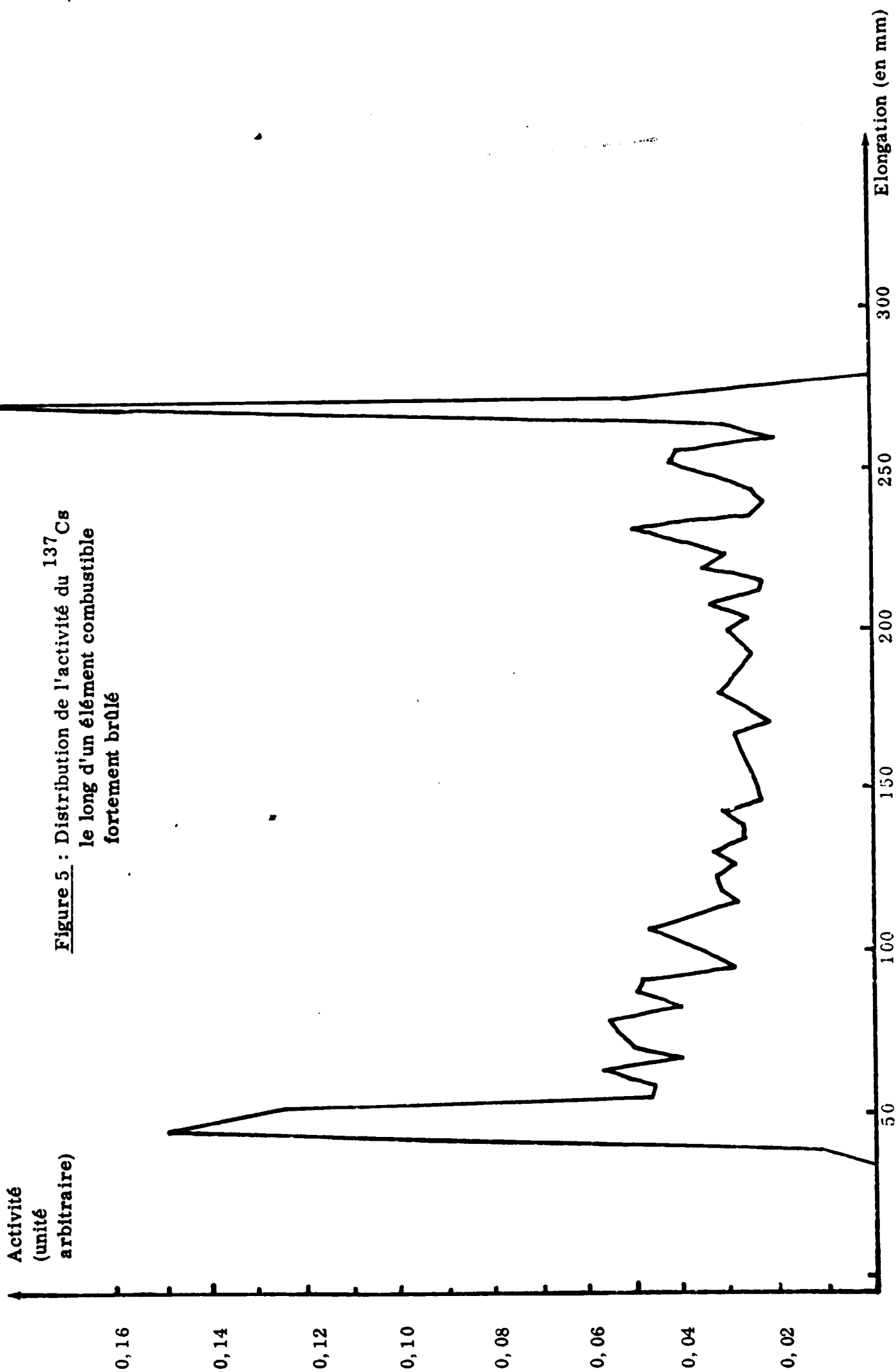
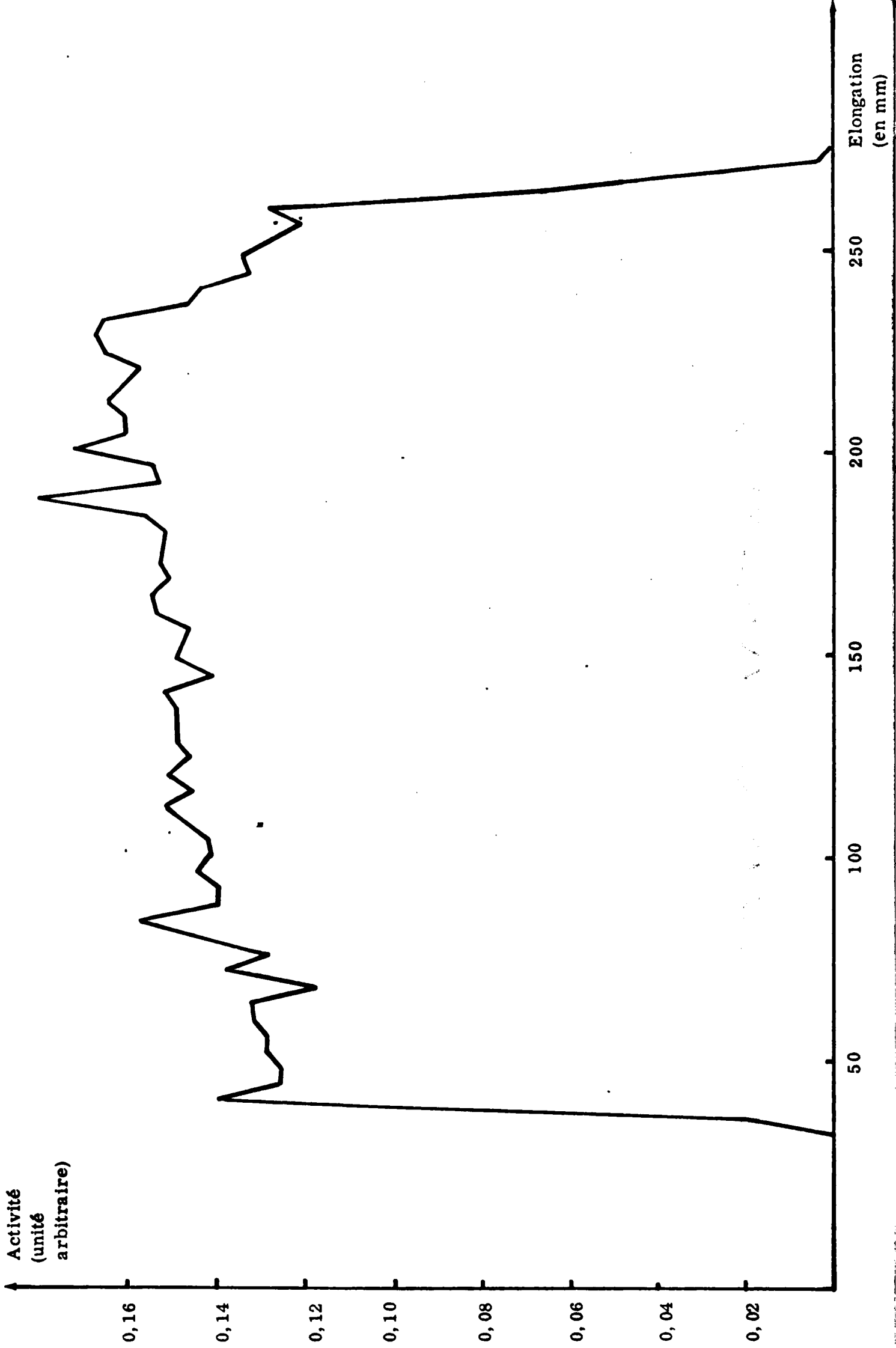


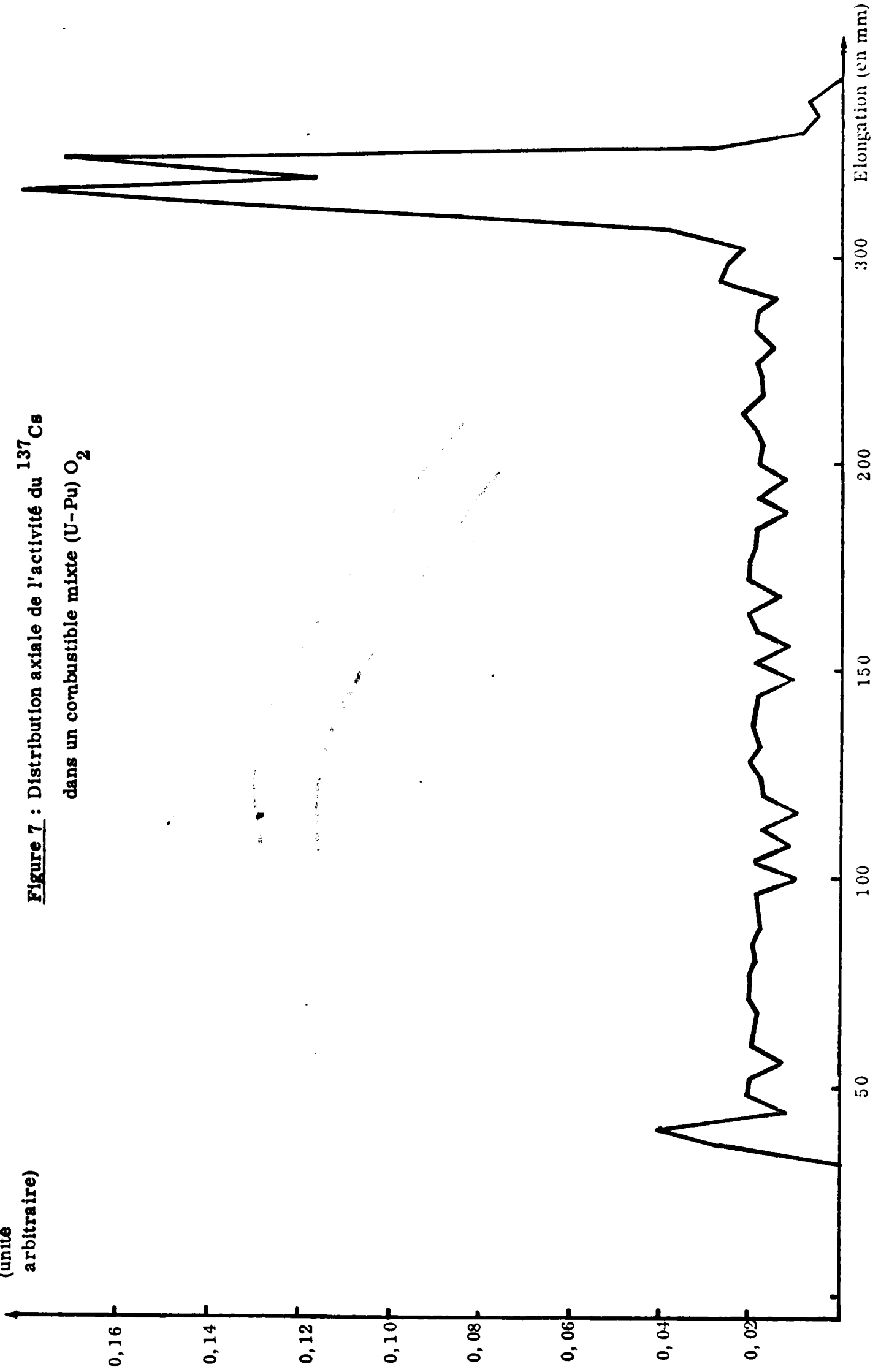
Figure 5 : Distribution de l'activité de ^{137}Cs le long d'un élément combustible fortement brûlé

Figure 6 : Distribution axiale de l'activité de ^{140}La dans un combustible mixte (U-Pu) O_2



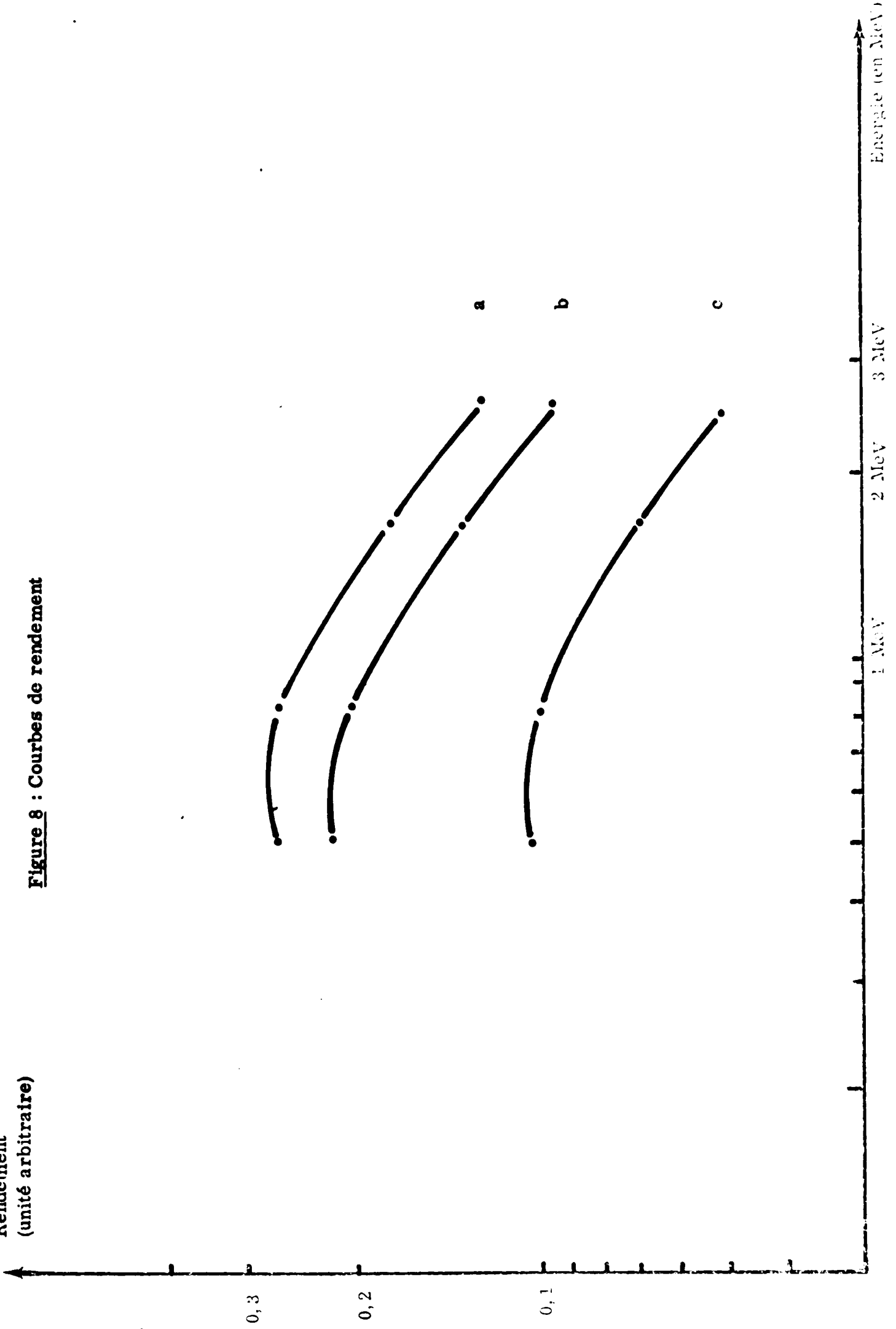
Activité
(unité
arbitraire)

Figure 7 : Distribution axiale de l'activité du ^{137}Cs
dans un combustible mixte (U-Pu) O_2



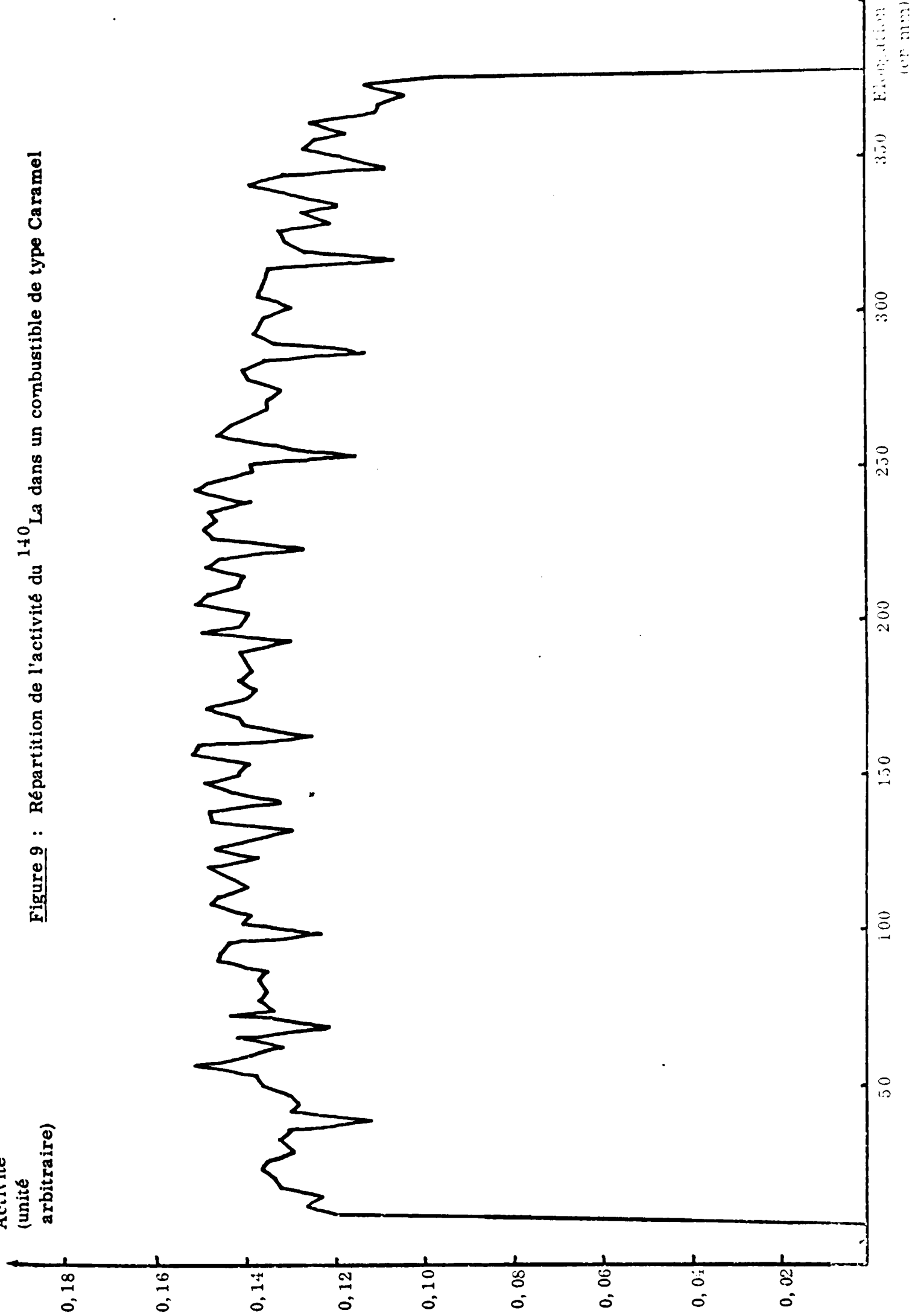
Rendement
(unité arbitraire)

Figure 8 : Courbes de rendement



Activité
(unité
arbitraire)

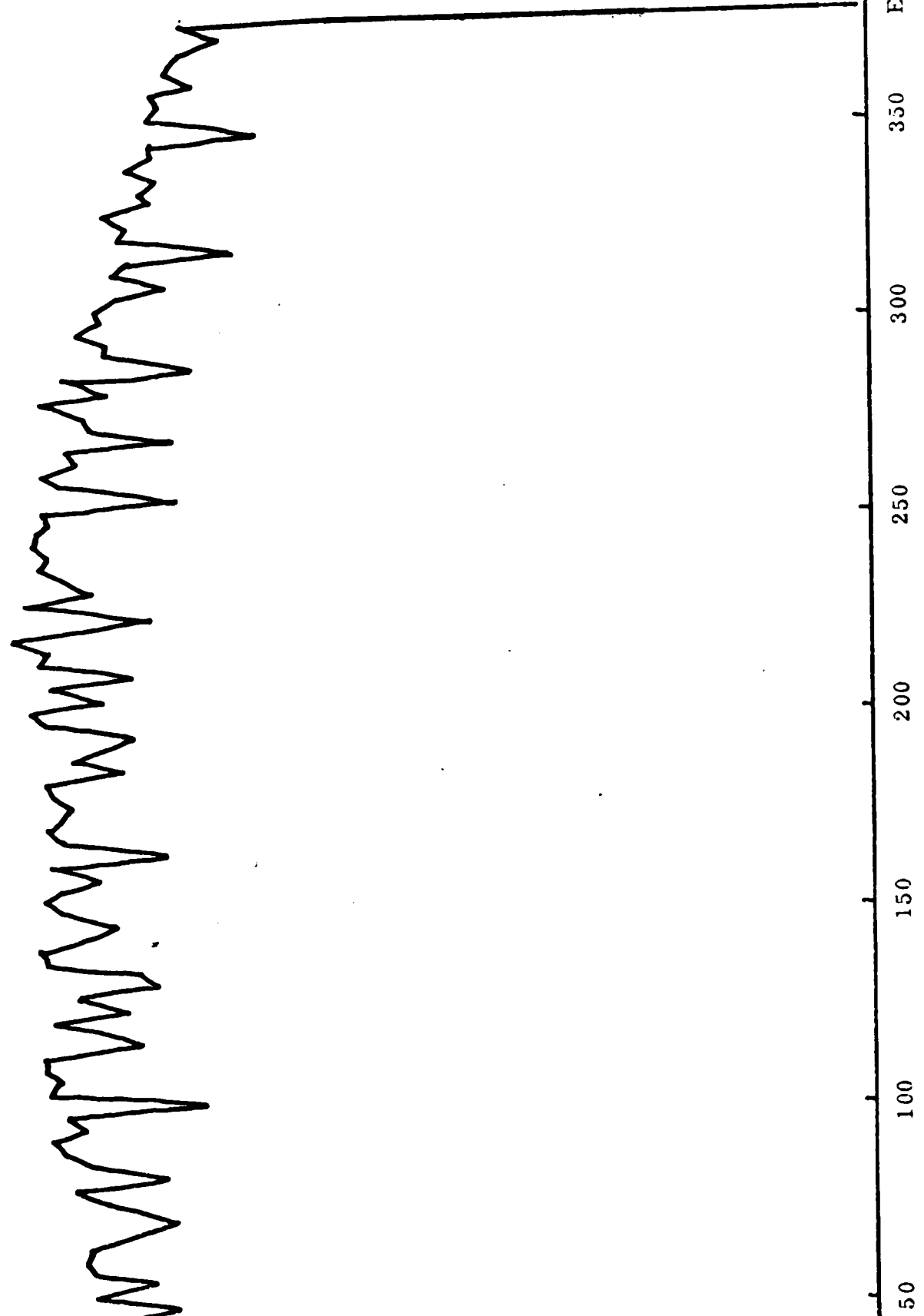
Figure 9 : Répartition de l'activité du ^{140}La dans un combustible de type Caramel



Activité
(unité
arbitraire)

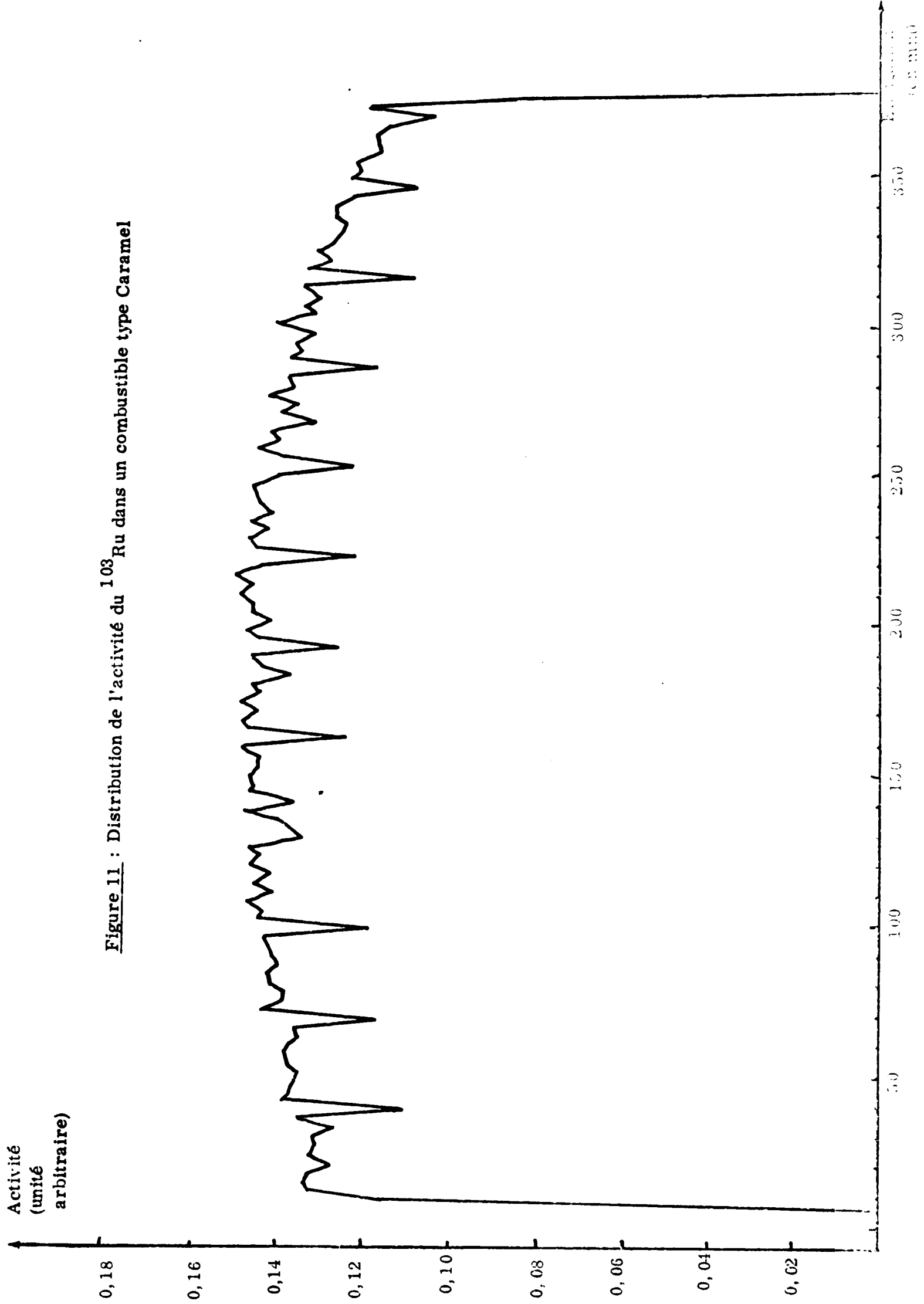
0,18
0,16
0,14
0,12
0,10
0,08
0,06
0,04
0,02

Figure 10 : Répartition de l'activité du ^{95}Zr dans un combustible type Caramel



Elongation
(en)

Figure 11 : Distribution de l'activité du ^{103}Ru dans un combustible type Caramel



Activité
(unité
arbitraire)

Figure 12 : Distribution axiale de l'activité du ^{140}La
dans un combustible mixte (U-Pu) O_2

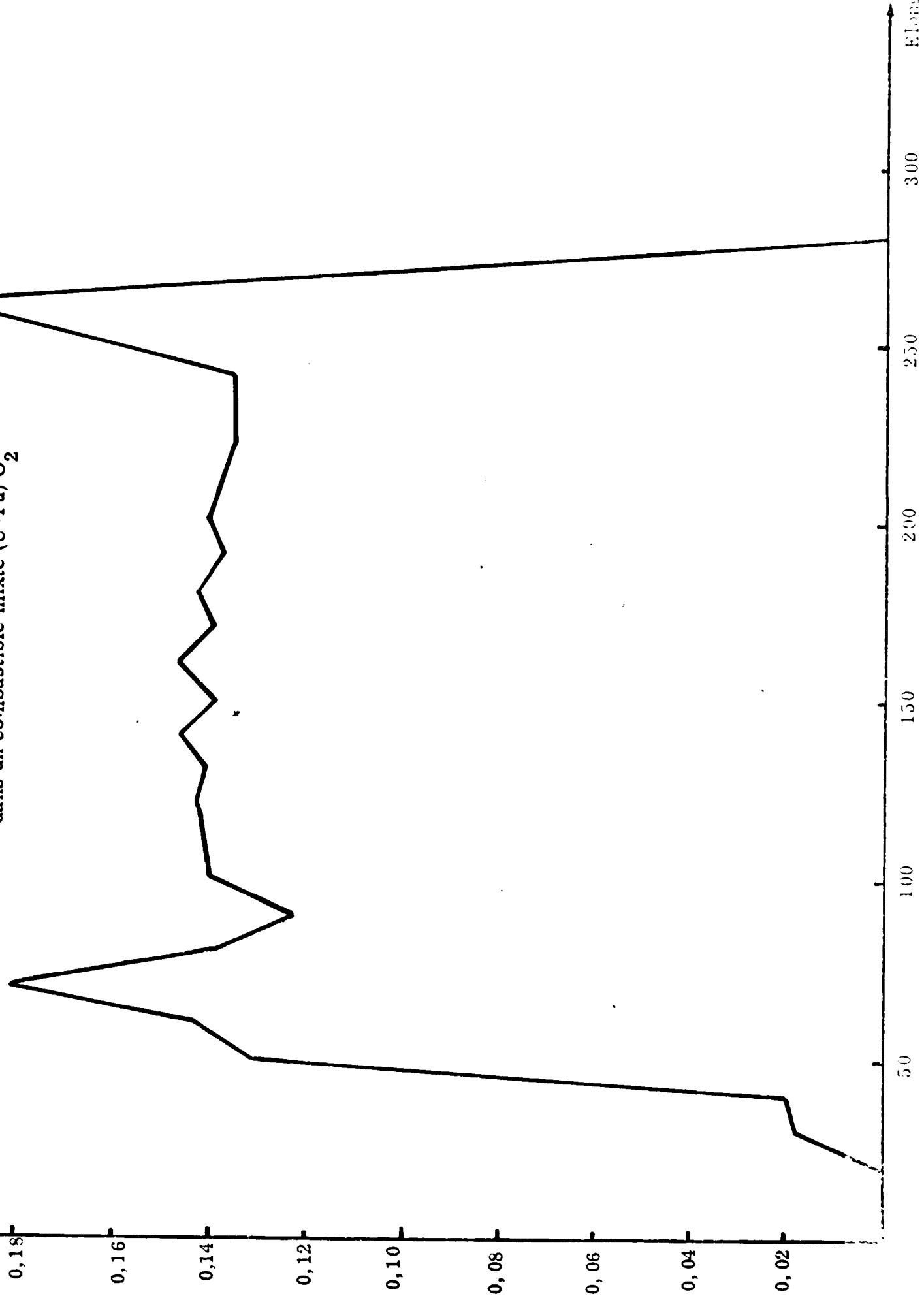


Figure 13 : Distribution axiale de l'activité de l'¹³⁴I (après irradiation)

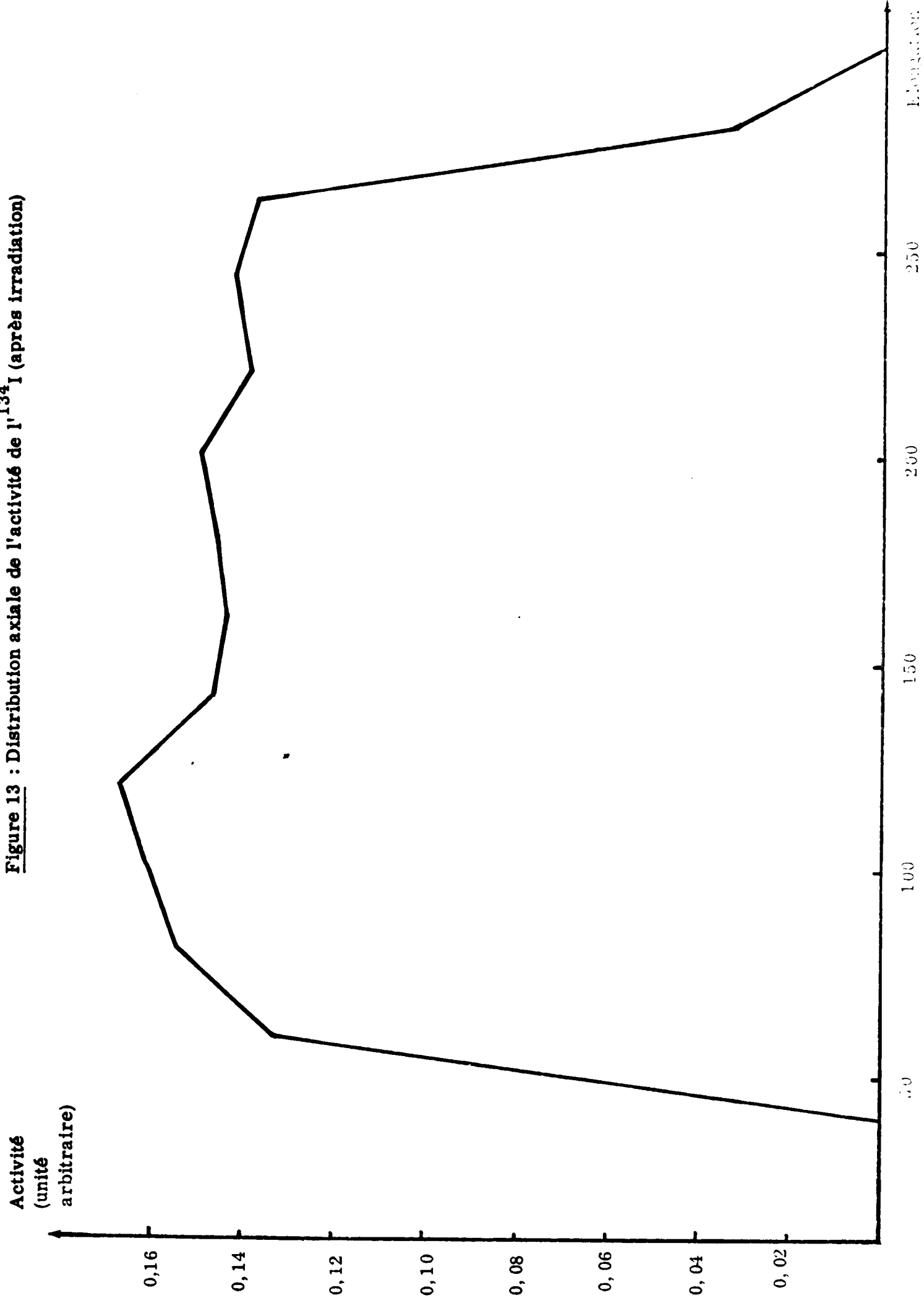


Figure 14 : Distribution axiale de l'activité de I^{134} (après réirradiation)

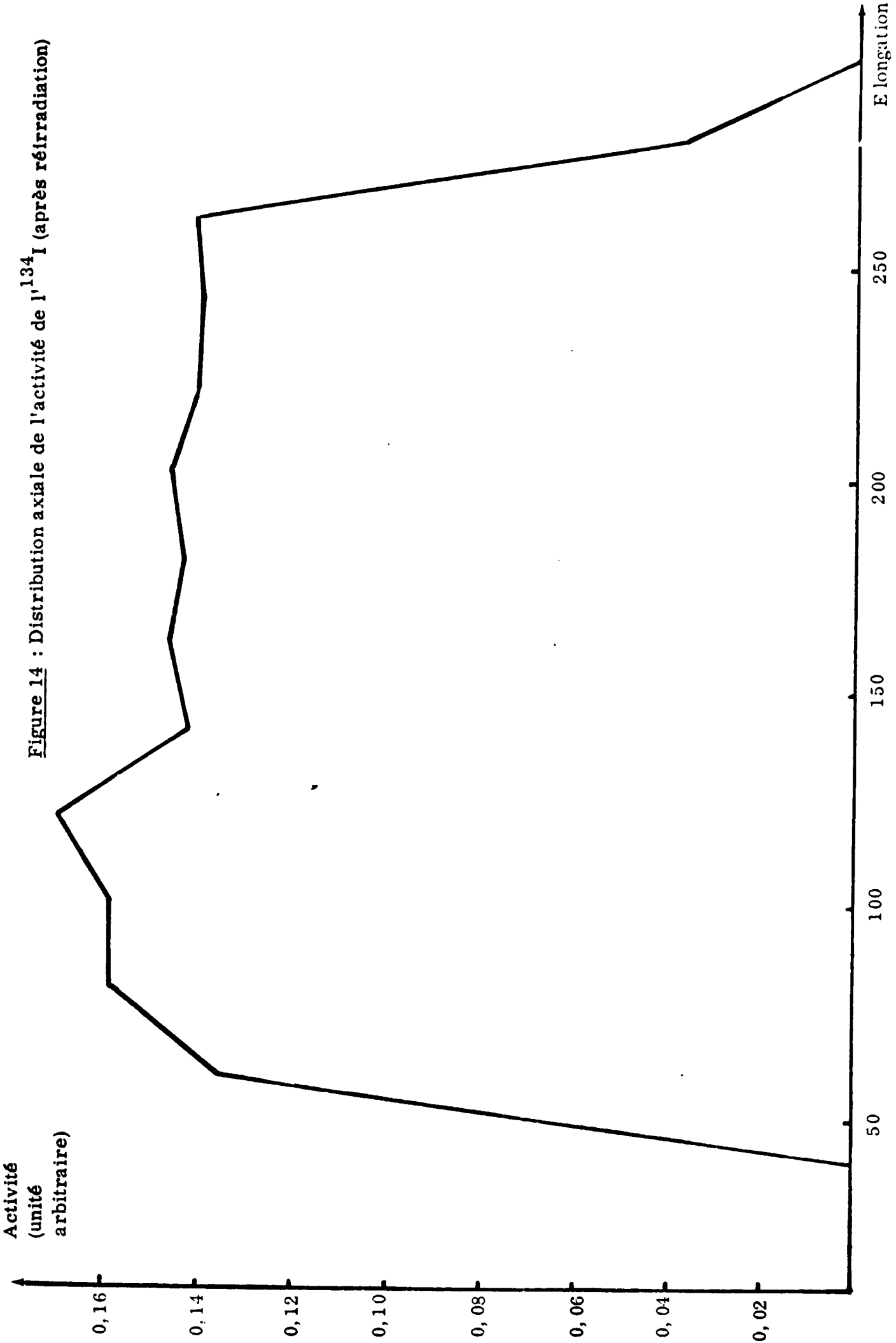


Figure 15 : Distribution axiale de l'activité du ^{92}Sr (après irradiation)

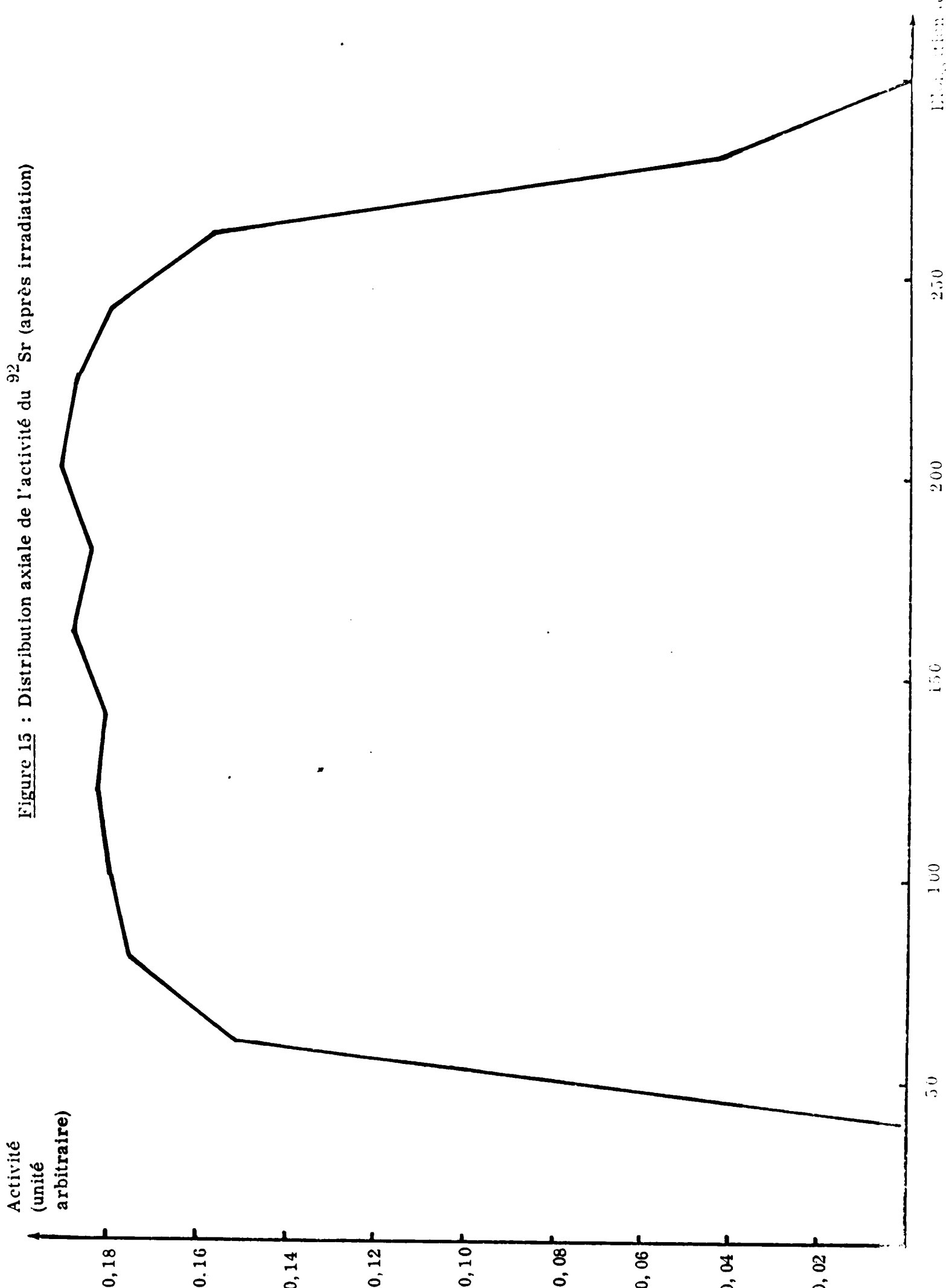
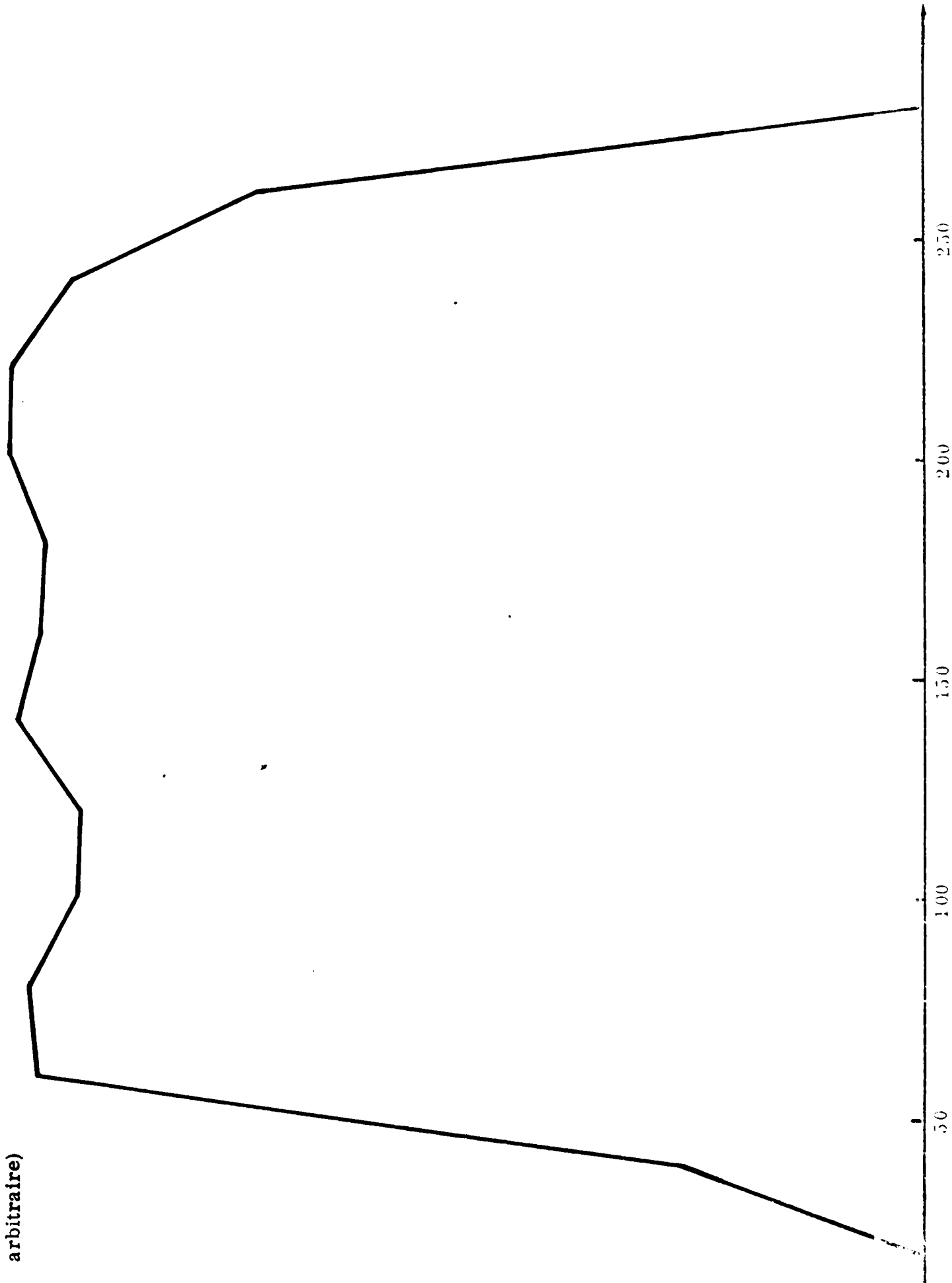


Figure 16 : Distribution axiale de l'activité de ^{92}Sr (après réirradiation)

Activité
(unité
arbitraire)

0,18
0,16
0,14
0,12
0,10
0,08
0,06
0,04
0,02



Distance (cm)

A N N E X E S

A N N E X E I

LES DISPOSITIFS D'IRRADIATION

Le réacteur nucléaire OSIRIS constitue un des moyens les plus puissants au monde pour l'étude sous rayonnement des matériaux de réacteurs nucléaires.

Il est équipé de dispositifs destinés à reconstituer autour des matériaux étudiés, dans le coeur même d'OSIRIS, l'environnement adéquat (condition de la centrale électronucléaire pressurisée PWR, ou de la centrale à haute température RHT, ou de la centrale à neutrons rapides) ; il s'agit de contrôler la nature chimique du milieu (H_2O , He, Na, impuretés), la pression (jusqu'à 180 bars pour H_2O), la température (jusqu'à 1 000 °C pour He), et d'évacuer une puissance qui peut être considérable (pompes, échangeurs, etc., adaptés aux fluides ci-dessus).

Ces dispositifs sont dits "boucle" ou "capsule", soit qu'il y a circulation importante de fluide, ou non.

*

*

*

A N N E X E I I

EXPRESSION DE L'EFFICACITE RELATIVE DE LA DETECTION

Dans le chapitre II, nous avons donné l'expression du rendement relatif ρ :

$$\text{Log } \rho = ax^2 + bx$$

avec $x = \text{Log} \left(\frac{E_s}{E} \right)$

E_s : énergie des photons émis par la source étalon, c'est-à-dire
1 332 keV (correspondant à la raie la plus énergétique du ^{60}Co)

E : énergie de la raie examinée du produit de fission

Notons que le rendement prend la valeur unité à 1 332 keV.

Le calcul des coefficients a et b s'effectue à partir du comptage de produits de fission possédant un nombre suffisant de raies gamma d'intensité élevée :

Soit $\rho(E_i, E_{i+1})$ le rapport des taux de comptages mesurés entre deux raies voisines d'énergie E_i et E_{i+1} , d'un même radionuclide :

$$\rho(E_i, E_{i+1}) = \frac{\rho(E_i)}{\rho(E_{i+1})} = \frac{S(E_i)}{S(E_{i+1})} \times \frac{I(E_{i+1})}{I(E_i)}$$

où $\frac{S(E_i)}{I(E_i)}$ représente le taux de comptage enregistré par désintégration β à l'énergie E_i

Alors :

$$\text{Log } \rho(E_i, E_{i+1}) = \text{Log } \rho(E_i) - \text{Log } \rho(E_{i+1}) = a(x_i^2 - x_{i+1}^2) + b(x_i - x_{i+1})$$

Posons : $z_i = \text{Log } \rho(E_i, E_{i+1})$

avec, pour écart-type :

$$\sigma_i = \sqrt{\frac{\Delta S_i^2}{S_i^2} + \frac{\Delta S_{i+1}^2}{S_{i+1}^2}} \quad (\Delta S = S, \text{ erreur statistique du comptage})$$

La meilleure approximation a^* , b^* des paramètres a et b est obtenue en minimisant la quantité :

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^{n-1} \frac{\left[z_i - a(x_i^2 - x_{i+1}^2) - b(x_i - x_{i+1}) \right]^2}{\sigma_i^2}$$

Ils vérifient donc simultanément :

$$\left[\frac{\delta \chi^2}{\delta a} \right]_{a^*} = 0$$

$$\left[\frac{\delta \chi^2}{\delta b} \right]_{b^*} = 0$$

Posons :

$$A = \frac{\sum_{i=1}^{n-1} z_i (x_i^2 - x_{i+1}^2)}{\sigma_i^2}$$

$$B = \frac{\sum_{i=1}^{n-1} (x_i - x_{i+1})^2}{\sigma_i^2}$$

$$C = \frac{\sum_{i=1}^{n-1} (x_i - x_{i+1}) \times (x_i^2 - x_{i+1}^2)}{\sigma_i^2}$$

$$D = \frac{\sum_{i=1}^{n-1} (x_i - x_{i+1}) \times z_i}{\sigma_i^2}$$

$$E = \frac{\sum_{i=1}^{n-1} (y_i^2 - y_{i+1}^2)^2}{\sigma_i^2}$$

Un calcul élémentaire donne finalement les coefficients a^* et b^* , ainsi que leur écart-type :

$$a^* = \frac{A \times B - C \times D}{E \times B - C^2}$$

$$b^* = \frac{E \times D - C \times A}{E \times B - C^2}$$

$$\sigma_{a^*} = \sqrt{\frac{E}{E \times B - C^2}}$$

$$\sigma_{b^*} = \sqrt{\frac{B}{E \times B - C^2}}$$

*

*

*

A N N E X E III

CARACTERISTIQUES DE LA SOURCE DE COBALT 60

La source de ^{60}Co utilisée pour mesurer l'activité des produits de fission (voir Chapitre II), a été obtenue par irradiation d'une plaque de ^{59}Co .

Cette source répond aux caractéristiques suivantes :

Dimensions :

- . longueur 40 mm
- . largeur 25 mm
- . épaisseur 0,5 mm

Constantes physiques et nucléaires :

- . densité : 8,9 g/cm³
- . section efficace de capture neutronique (à 2200 m/s) : $\sigma_0 = 37$ barns
- . constante de décroissance radioactive : $4,178 \cdot 10^{-9} \text{ s}^{-1}$

Activité de la source à la fin de l'irradiation :

$$A_{60} = 1,86 \cdot 10^{12} \text{ d. p. s/cm}^3$$

$$\text{avec } \frac{\Delta A_{60}}{A_{60}} \simeq 3 \%$$

*

*

*

A N N E X E I V

LE DISPOSITIF EXPERIMENTAL D'ISIS

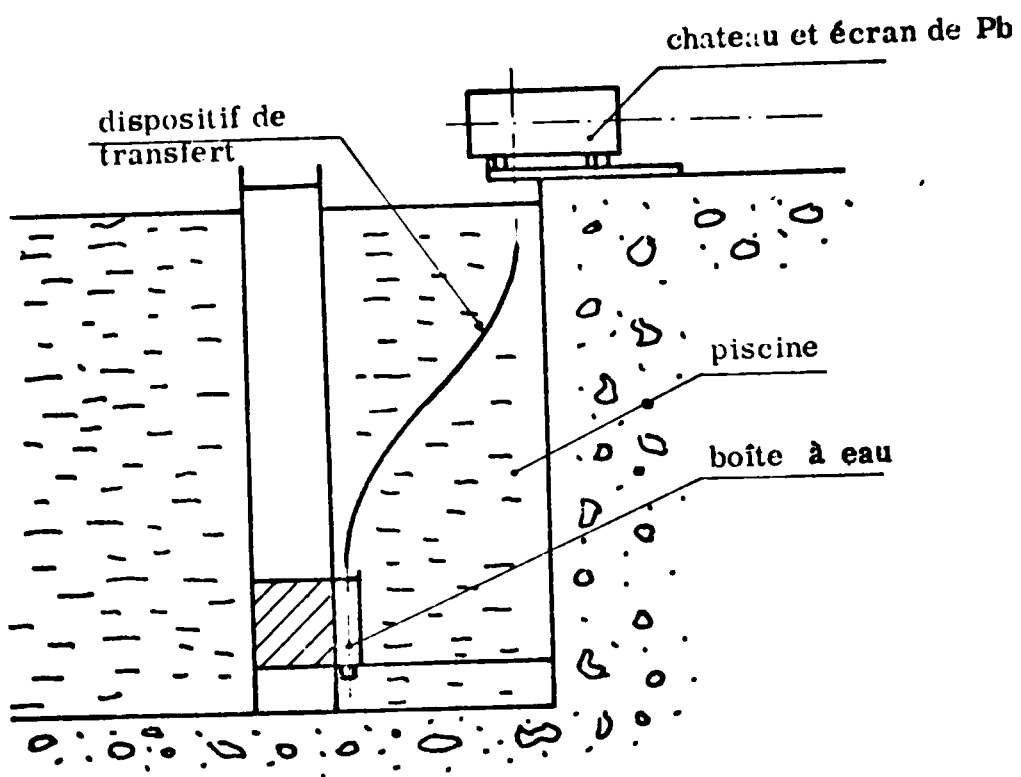
Dans cette annexe, on trouvera, sous forme de figure , le dispositif de spectrométrie gamma situé sur le bord de la piscine d'ISIS.

A l'aide de cette installation, nous avons observé et identifié les produits de fission à vie courte qui convenaient à la détermination de puissance (voir chapitre IV).

*

*

*

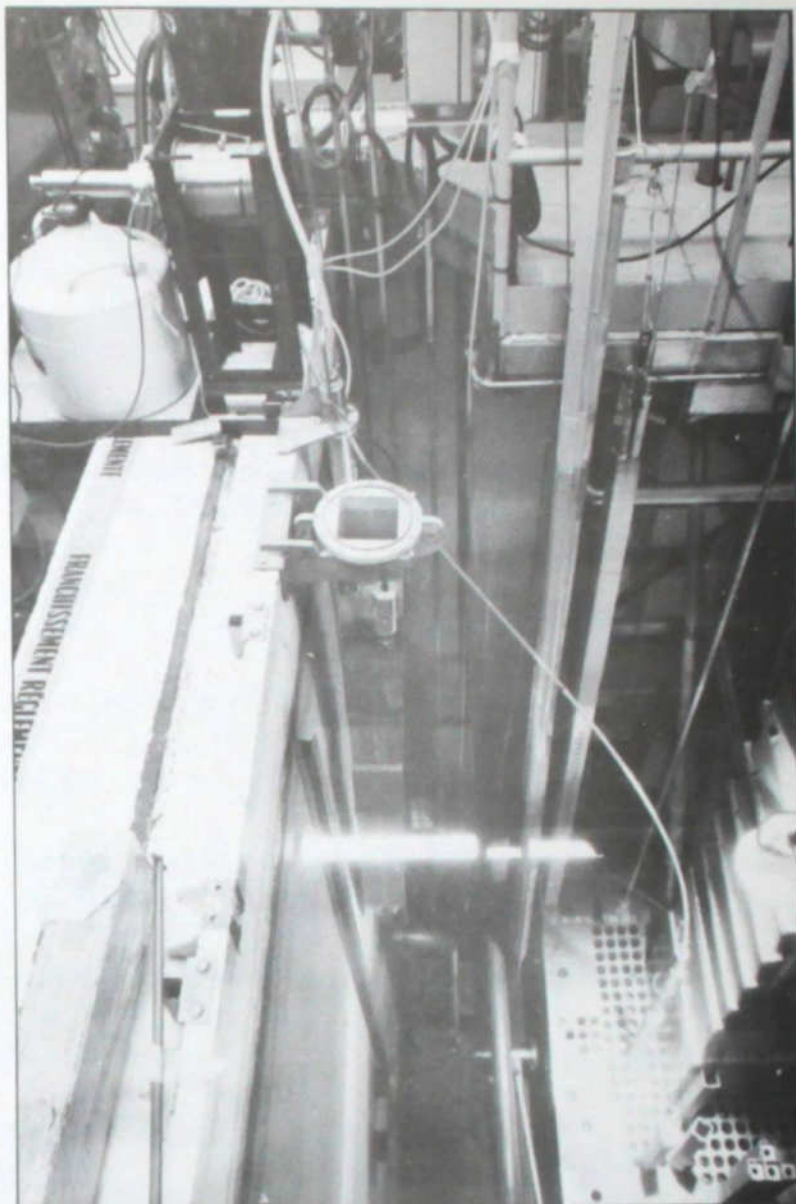


**SCHEMA DU DISPOSITIF DE SPECTROMETRIE GAMMA
D'ISIS**

DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Ci-contre :

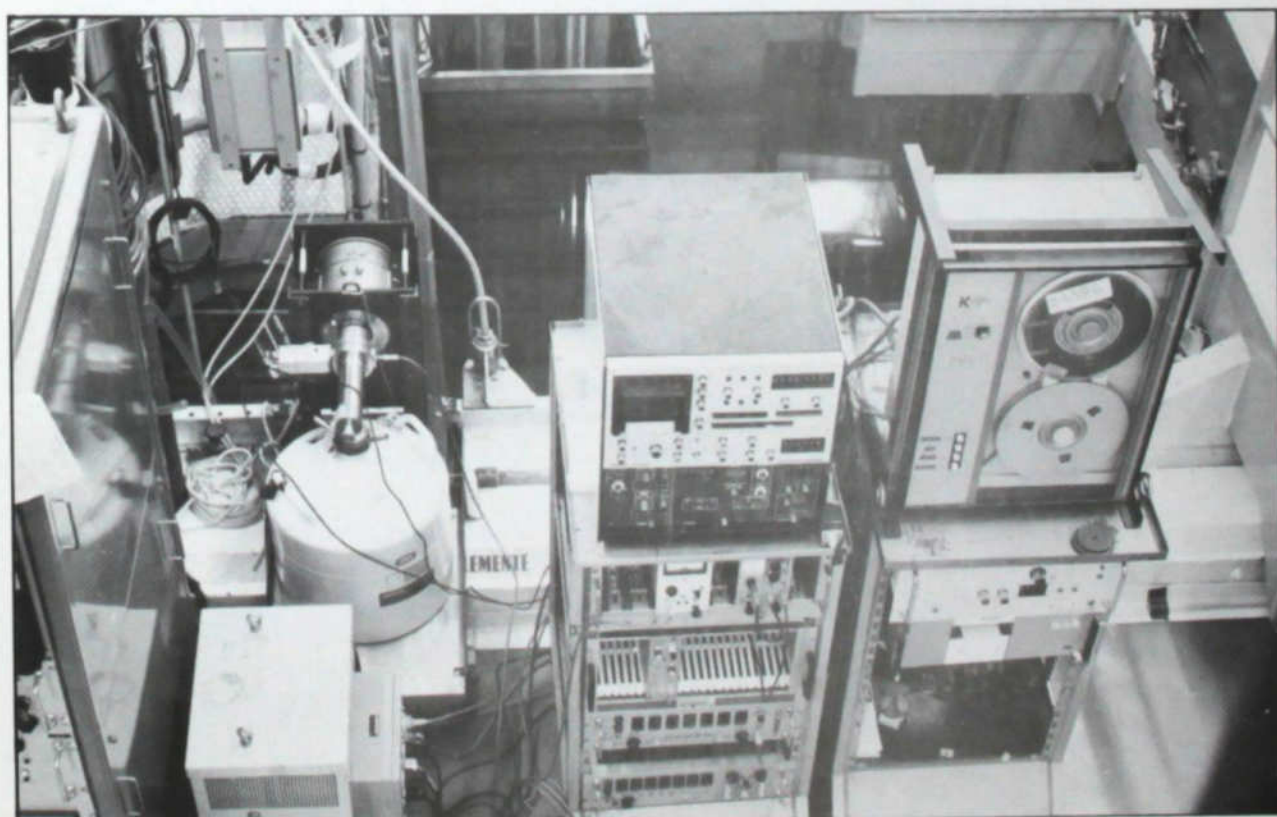
Emplacement expérimental
Diode et cryostat



Ci-dessous :

Chaîne de mesure :

- . diode et cryostat
- . sélecteur "Didac"
- . enregistreur "Kennedy"



- | | | | |
|------|------------------------------------------------------------------------|---------------|----------------|
| [14] | "Bibliothèque LARA"
par M. BARTHE et autres | | Septembre 1974 |
| [15] | "Compilation of fission product fields"
par M. E. MEEK, B. P. RIDER | NEDO - 12 154 | Janvier 1974 |
| [16] | "Table of isotopes"
par C. M. LEDERER | | 1967 |
| [17] | "Nuclear data sheets " | Vol. 15 , 3 | Juillet 1975 |

*

*

*

Συναγωγή 01/12/48

Επιθετική συνάντηση