

CEA.CONF.

FR 7700 530

Séminaire consacré à l'utilisation sur site de la spectrométrie gamma pour l'étude et la surveillance du combustible irradié des réacteurs à eau. AMMA  
Courbevoie, France, 16 novembre 1976 REACTEURS

CEA-CONF--3608

Communication présentée par Jean-Marie CERLES et Geneviève SIMONET  
(CEA - SPS/SEARP/Saclay).

"EXAMEN DES COMBUSTIBLES IRRADIES SUR LE BANC DE SPECTROMETRIE GAMMA  
D'OSIRIS. DETERMINATION DE LA PUISSANCE ET DU TAUX DE COMBUSTION".

Résumé :

On dispose, à Saclay, d'une installation originale de spectrométrie gamma, située dans la piscine même du réacteur OSIRIS.

Elle permet l'examen des éléments combustibles irradiés à OSIRIS ou d'éléments d'autres origines.

On donne les caractéristiques principales de cette installation. On insiste sur ses possibilités et sur les applications de la gammamétrie dans l'étude du comportement des produits de fission et la détermination de la combustion massique et de la puissance linéaire d'un élément irradié.

## PRESENTATION - POSITION DU PROBLEME.

A Saclay, nous disposons d'une installation de spectrométrie gamma dans la piscine d'OSIRIS. Un tel poste de mesure permet l'analyse directe, rapide non destructive, de tout élément combustible nucléaire dans la piscine.

Notre objectif est de participer à l'élaboration des informations nécessaires au suivi et au dépouillement d'irradiations de combustibles destinés aux centrales nucléaires, en particulier :

- sur le plan des performances du combustible : connaître l'évolution du taux de combustion et de la puissance,
- sur le plan de la sécurité : connaître la tenue du combustible et de sa gaine.

Ces problèmes sont permanents ; on doit pouvoir les résoudre à tout moment. Il s'agit de suivre le rendement, d'évaluer les températures atteintes au cœur du matériau, de déceler les modifications de structure. Ces données peuvent avoir pour témoins des éléments qui réagissent de façon spécifique aux conditions imposées.

Si ces éléments existent dans le combustible et s'ils sont accessibles à la mesure, nous saurons répondre aux questions posées.

Or, il se crée, par fission, toute une gamme d'éléments aux propriétés distinctes, dont la plupart sont caractérisés par des isotopes radioactifs émetteurs gamma ; ce rayonnement très pénétrant et très sélectif en énergie se détecte sans intervention de démantèlement ni isolement chimique. Emanant directement du combustible, ce moyen de mesure s'impose de lui-même. L'interprétation de l'évolution de tout produit de fission, sa localisation dans l'espace et sa variation dans le temps constitue un véritable traçage du comportement du combustible.

Ainsi, ayant accès à tout moment à un grand nombre d'isotopes, à vie brève ou longue, issus du combustible lui-même ou des dispositifs afférents, nous réalisons d'abord une auscultation qualitative immédiate qui permet d'établir un diagnostic très complet.

Puis, dès l'instant où l'on sait mesurer quantitativement les P.F. qui sont les paramètres caractéristiques des fissions produites, on peut déterminer le taux de combustion et la puissance de fonctionnement.

## I - CONCEPTION DE L'INSTALLATION.

### I.1 - Banc de mesure :

Situé sur une paroi de la piscine à 3m environ du coeur, le banc de mesure gamma peut recevoir très rapidement un combustible en expérimentation à OSIRIS (il est évidemment possible d'examiner des éléments combustibles de provenance extérieure, crayons de centrale de puissance, par exemple). L'élément combustible seul, dans sa capsule ou sa boucle, est maintenu sur le banc, celui-ci est solidaire d'une table qui présente 2 degrés de liberté :

- . un déplacement vertical entraîné par un moteur selon un mouvement continu alterné, avec inversion automatique de sens aux extrémités. Les cotes et la vitesse (de 0,1 à 1 mm/s) sont adaptées à chaque expérience ; la position est suivie au 1/100 grâce à un disque cranté associé à un couple de photodiodes.
- . un déplacement horizontal également automatisé.

Le dispositif défile ainsi devant un canal aménagé dans la paroi en béton de la piscine. Un collimateur en acier inoxydable y ouvre 2 fenêtres réglables :

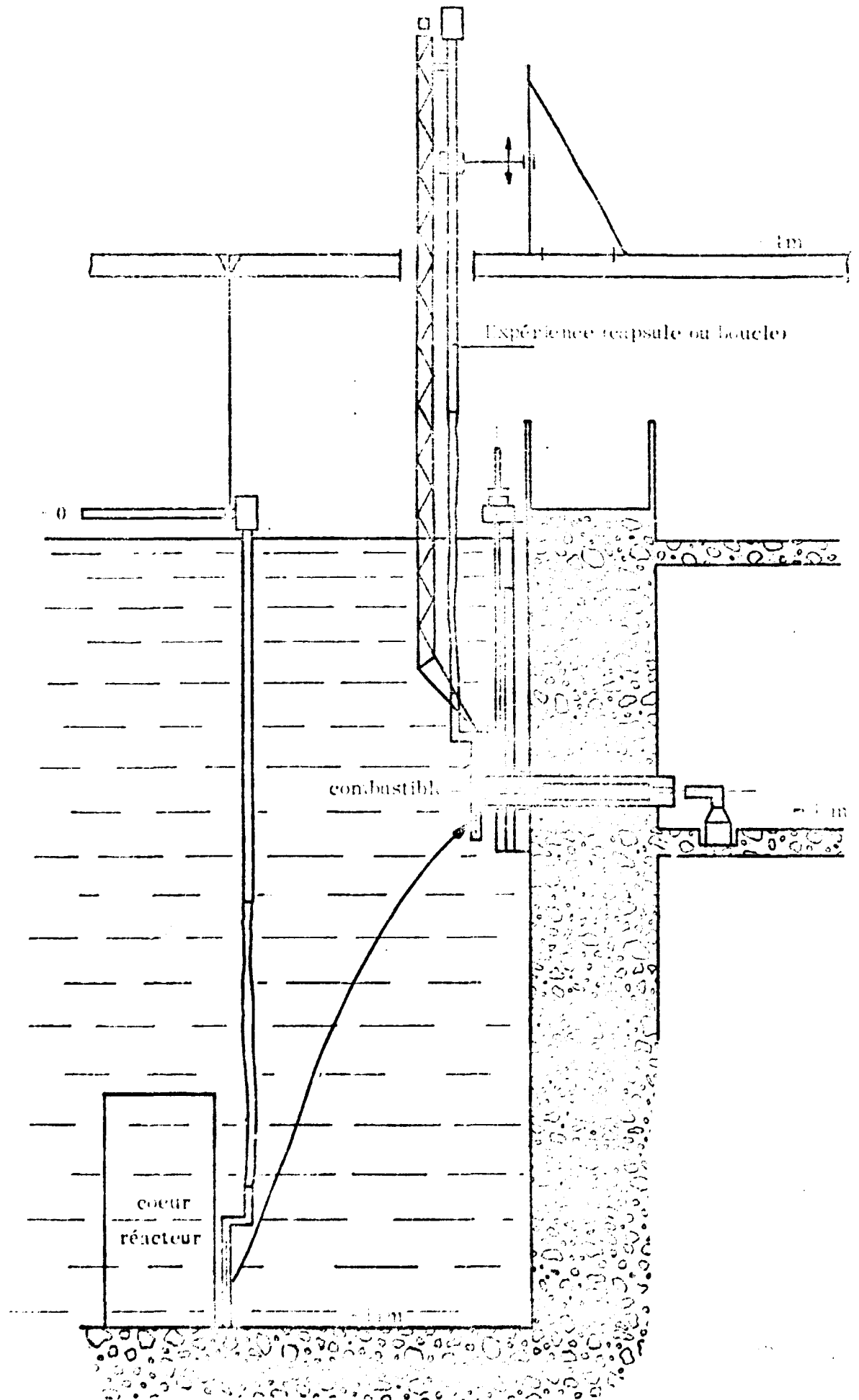
- . l'une horizontale, de 25 mm de largeur, d'épaisseur variable de 0 à 4 mm.
- . l'autre verticale, de 5 mm de hauteur, " " " "

Ces variations d'ouverture sont engendrées par un mouvement de translation longitudinale de coins.

Une post-collimation réduit les gamma diffusés par les structures du collimateur.

### I.2 - Détecteurs :

Ils reçoivent le faisceau de gamma issus de l'élément de volume du combustible délimité par la fenêtre de collimation.



Le poste classique est équipé d'un semicteur Ge-Li, coaxial vrai de 60 cc, d'efficacité relative  $> 10 \%$ , de résolution 1,8 keV dont le rapport Pic/Compton = 35.

Ce détecteur se trouve à 3 mètres de l'expérience.

Nous disposons, par ailleurs, d'une diode intrinsèque de performances équivalentes ainsi que d'une planar d'efficacité  $\approx 0,1 \%$ , montées toutes deux dans des cryostats tubulaires immergeables.

Elles peuvent pénétrer dans le canal pour s'approcher des éléments peu actifs ou même être plongées en piscine pour des explorations "in situ".

### I.3 - Originalité de la méthode :

L'exploration du combustible se fait par déplacement relatif de celui-ci par rapport aux détecteurs.

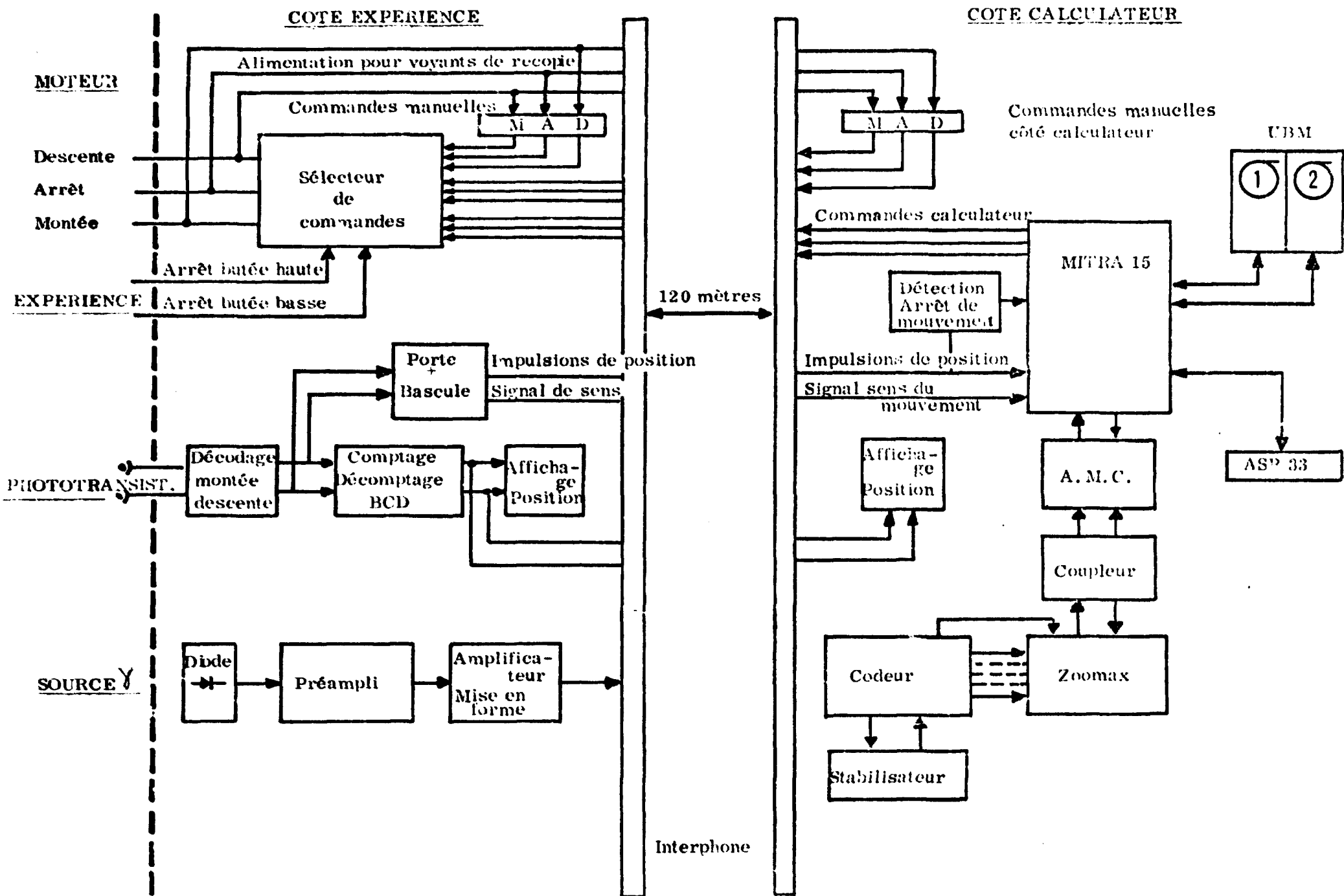
Notre objectif est de réaliser avec certitude un diagnostic complet. Pour l'atteindre, plutôt que des positionnements discontinus donnant lieu à une succession de pointés échelonnés dans le temps et dans l'espace, nous avons choisi un déplacement continu du combustible.

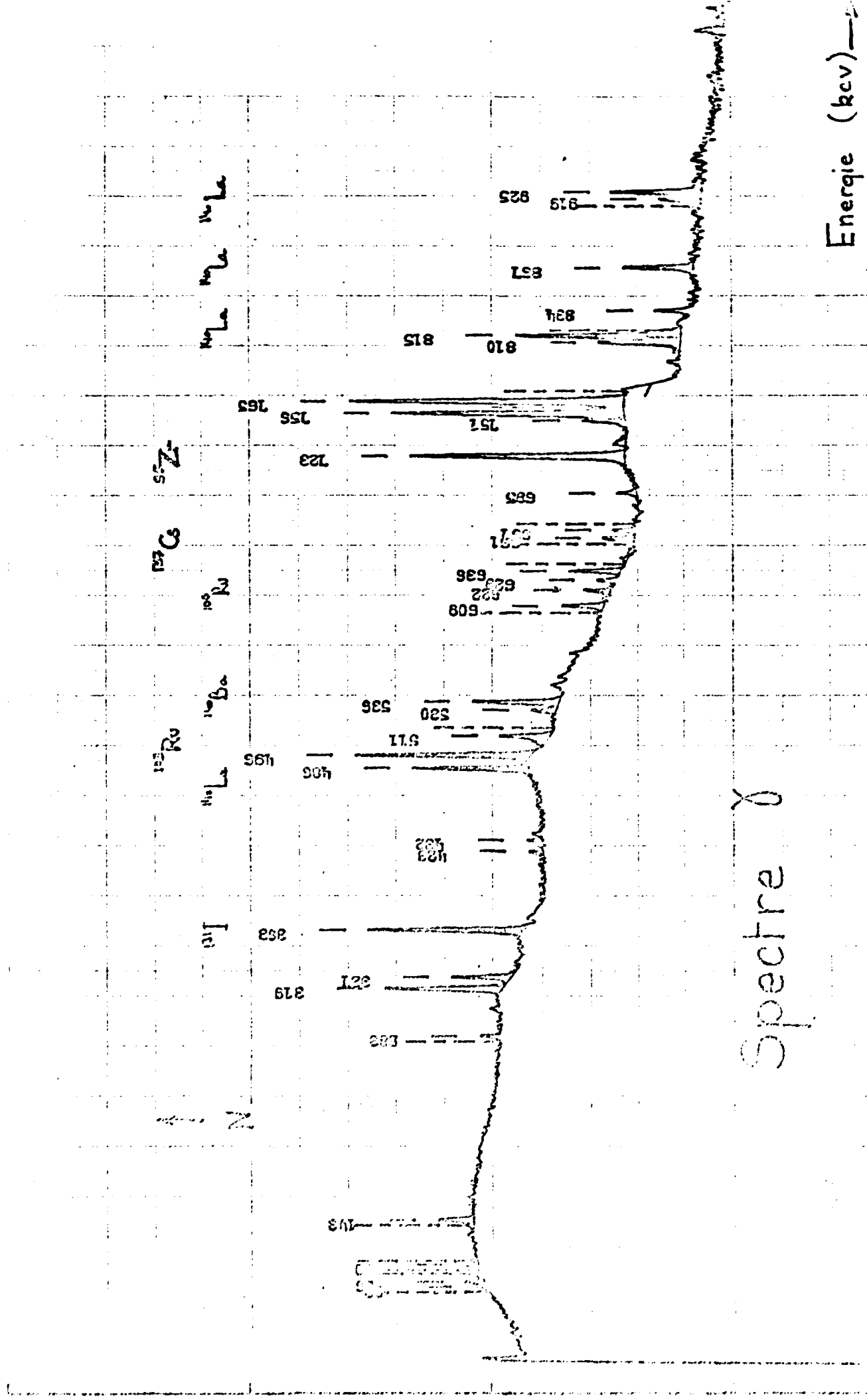
Cela revient à remplacer un découpage spatial matérialisé en mesures distinctes, par un découpage temporel.

- Ce procédé permet d'obtenir la localisation géographique des fissions sans inhomogénéité, sans omission ni chevauchement possible et, dans la même mesure, l'intégrale des fissions produites dans le combustible, avec une sécurité absolue.

- Par ailleurs, dans le cas des vies brèves, cette méthode évite de courir le risque d'effectuer la mesure des derniers points après disparition des isotopes, si la mesure des premiers points a été trop longue. Il suffit de balayer rapidement le combustible, chaque zone commencera d'être explorée tôt. La vitesse est choisie selon la période des isotopes intéressants ; le nombre de cycles régiera la précision statistique du comptage.

- Lors de la comparaison des activités relatives aux différentes cotes, nous nous affranchissons des corrections de décroissance délicates : le rapport des activités sommées à chaque extrémité est indépendant du nombre de cycles effectués ; lié seulement à la durée du 1/2 cycle et à la période du P.F., on calcule  $\text{Activité haut/Activité bas} = ch \lambda t$ .  
Les différentes zones sont donc directement comparables.





Spectre  $\gamma$

Energie (kev)

#### I.4 - acquisition des informations :

En sortie de chaîne électronique, les données sont stockées sur un double analyseur ZOOMAX associé à un MITRA 15 et 2 périphériques à bande magnétique : c'est cet ordinateur qui gère l'ensemble du fonctionnement de façon à localiser les renseignements tout en réalisant une acquisition continue. Il coordonne le défilement de la table et la répartition des informations en zones consécutives.

Cela revient à découper fictivement la longueur L à examiner en  $2\Delta L$  zones correspondant à la résolution choisie pour l'expérience. Après la durée relative au stockage sur une zone, le stockage est commuté sur l'autre moitié de la mémoire pendant que le 1er spectre est transféré sur bande magnétique ... Après inversion, lorsque la mesure zone  $\Delta L$  sera repassée devant le collimateur, le calculateur ajoutera canal par canal le nouveau spectre aux valeurs obtenues aux passages précédents et stockera le résultat sur le 2ème périphérique à bande magnétique. Il n'y a ainsi aucune limite due à la saturation des mémoires.

### II - INTERPRETATION DES DONNEES.

#### II.1 - Dépouillement des spectres gamma : programme JONQUES :

Le périphérique du MITRA livre des bandes magnétiques compatibles avec l'IBM 360/91 de la C.I.S.I., qui leur applique les traitements de notre choix. Les spectres  $\gamma$  sont dépouillés par le programme JONQUES, édifié par M. PANISSET.

Après localisation des photopics, les isotopes émetteurs sont identifiés et dosés (les pics gaussiens, sur fond continu linéaire, sont localisés par calcul des dérivées secondes lissées).

Nous avons adapté le programme à notre installation et obtenons directement les répartitions d'activité.

#### II.2 - Surveillance du comportement du combustible :

Les profils de répartition des différents P.F. donnent des renseignements immédiats précieux aux métallurgistes, qui interprètent directement la façon dont réagit le combustible et son environnement.



Distribution  
axiale

<sup>137</sup>Cs

<sup>131</sup>I

<sup>95</sup>Zr-Nb

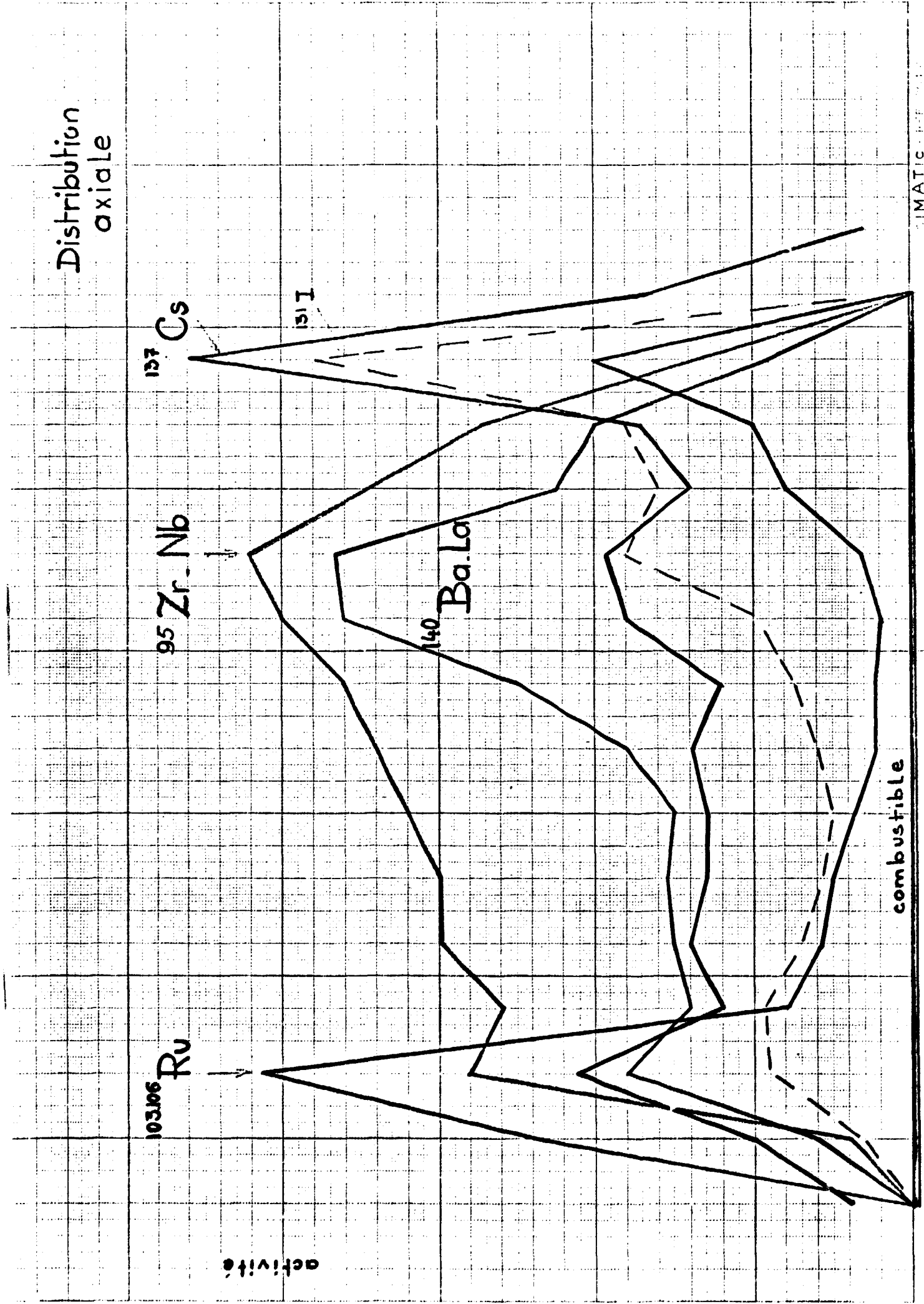
<sup>140</sup>Ba-La

<sup>103</sup>Ru

combustible

activité

FIG. 1



Nous avons regroupé, sur une même planche, les répartitions axiales des isotopes d'un combustible qui a atteint des températures particulièrement élevées. On observe au niveau du combustible :

- Migration de certains P.F. ( $^{137}\text{Cs}$  que l'on trouve en périphérie et accumulé aux extrémités. Il a d'ailleurs quitté le combustible au profit du circuit sodium).

Formation de lingots ( $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ , préférentiellement dans la cheminée centrale et aux extrémités).

Les affinités chimiques et leur évolution en fonction du temps témoignent des températures atteintes.

- Restructuration des matières fissiles, densification, formation de trous, fractures, fusion.

Le  $^{95}\text{Zr}$  très réfractaire, est généralement lié au combustible.

- Indications sur les probabilités de corrosion (la fission des oxydes libère de l'oxygène). Il peut notamment se former un iodure de césium, corrosif des gaines, dont l'accumulation locale permet de prévoir ce risque.

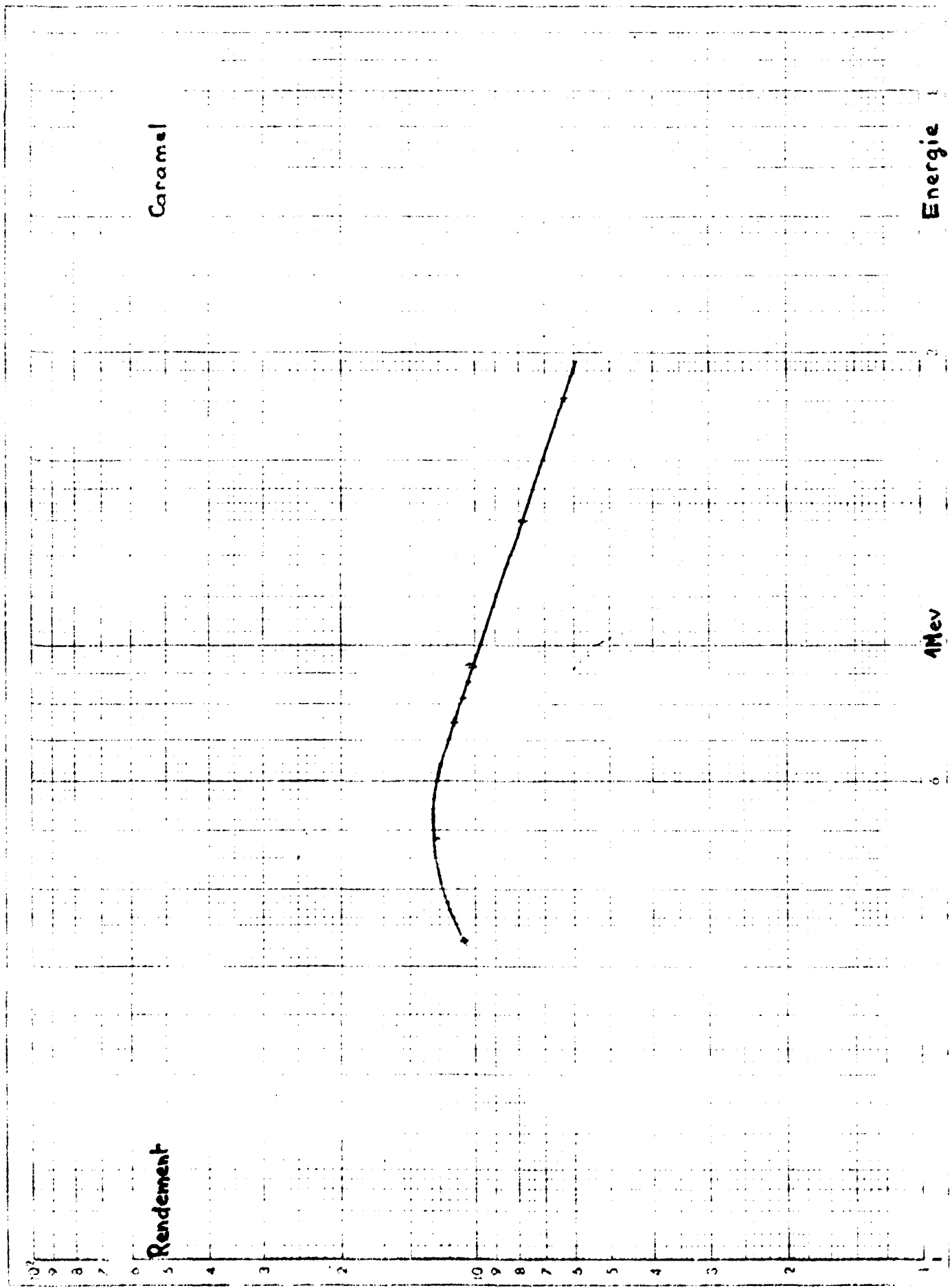
- Rupture de gaine, avec fixation de P.F. volatils, iodés, ...

L'examen débordant le combustible et explorant toute la boucle d'irradiation permet de dresser un bilan complet : abondance dans le fluide caloporteur, fixation sur les structures, fuite de P.F. volatils ou gazeux, premiers témoins des incidents, qui sont souvent à vie brève. Ces renseignements peuvent être complétés par des mesures réalisées à l'aide des diodes tubulaires.

### II.3 - Valeur absolue de l'activité :

- Le programme JONQUES donne le nombre de coups  $N_{\text{PF}}$  correspondant à l'aire du photopic.

- L'intensité  $I$  du rayonnement gamma concerné permet de connaître le nombre de désintégrations reçues de l'isotope émetteur.



Caramel

Energie

Rendement

Mev

- Pour relier les événements reçus par le détecteur aux événements émis par la source mesurée, on détermine la valeur absolue de l'efficacité de détection en mesurant dans les mêmes conditions (géométrie, ouverture de collimateur, chaîne de mesure et d'exploitation) une source étalonnée de  $^{60}\text{Co}$ .

- La transmission des gamma est comparable entre source et expérience, après correction  $\alpha$  d'autoatténuation dans le combustible et atténuation dans les structures ; le programme MERCURE IV intègre des noyaux ponctuels d'atténuation en ligne droite par un MONTE-CARLO tridimensionnel.

Nous appliquons ce code à l'énergie de l'étalon, et déterminons ainsi l'efficacité absolue à 1,33 MeV.

- La fonction réponse du détecteur en fonction de l'énergie se détermine expérimentalement par la mesure d'un P.F. qui est présent au sein même du combustible, qui émet un nombre important de raies  $\gamma$ , d'intensités élevées et bien connues, couvrant un large domaine spectral, encadrant l'étalon et les P.F. intéressants.

Le  $^{140}\text{La}$ , généralement abondant (rendement de fission élevé et période courte), convient chaque fois que son profil vérifie une répartition similaire à l'isotope dosé, donc une distribution équivalente à l'intérieur du combustible.

Nous obtenons, voir planche, une courbe qui représente à la fois la variation d'atténuation et l'évolution du rendement de détection, en fonction de l'énergie. Nous lisons la relation  $\epsilon$  entre l'énergie concernée et 1,33 MeV.

Cette procédure élimine l'introduction de coefficients théoriques incertains.

Après normalisation des volumes étalon-source, les mesures donnent lieu aux activités

$$A = N_{\text{PF}} \frac{A_{\text{Co}}}{N_{\text{Co}}} \frac{1}{I} \alpha \frac{1}{\epsilon}$$

#### II.4 - Détermination des taux de combustion :

Il s'agit de l'énergie totale qui a été fournie, pour 1 tonne de combustible. S'il existe un P.F. qui représente l'intégrale des fissions produites au cours de la vie du combustible, sa simple mesure donne accès au nombre de fissions, et connaissant l'énergie libérée par fission, on en déduira le taux de combustion.

Le  $^{137}\text{Cs}$  a une demie-vie d'environ 30 ans, ce qui rend négligeables les pertes par décroissance. Son rendement de fission est relativement élevé ( $\approx 6,5\%$ ) et est proche pour différents isotopes fissiles. Son énergie  $\gamma$  est encore suffisamment élevée pour qu'il traverse le combustible et pour que son photopic émerge du spectre gamma (un temps de refroidissement est nécessaire, d'autant plus grand que le taux d'irradiation est faible, ceci afin de faciliter le dépouillement des spectres, en laissant décroître les isotopes à vie brève, notamment  $^{132}\text{I}$  dont une raie voisine risque d'interférer).

Le défilement continu et le dépouillement de la sommation des spectres permettent de chiffrer l'activité totale, comme il a été dit précédemment. A partir de celle-ci, on connaît le nombre d'atomes, puis le nombre de fissions. Le coefficient de conversion énergie/fission permet d'obtenir l'énergie qu'il suffit de normaliser à 1 tonne.

$$\tau = A \text{ dps/cc} \cdot \frac{1}{\lambda} \cdot \frac{1}{\rho} \cdot c \cdot \frac{1}{M} \quad \text{MWJ/t}$$

#### Remarques :

1°) Cette première approche est valable si le P.F. choisi est effectivement représentatif de la totalité des fissions. Il faut s'assurer que le comportement ne perturbe pas les résultats. Le Cs a une très forte tendance à la migration (accumulations importantes aux extrémités de l'élément), et notre défilement continu assure la mesure valable de ce qui concerne le combustible. Mais la diffusion, la volatilité de cet élément risquent d'entraîner un dégagement hors combustible de ce P.F. En ce cas, le bilan de la détection est incomplet dans le seul combustible et nécessite l'exploration des structures.

Nous confirmons généralement les résultats par la mesure d'autres P.F. ( $^{95}\text{Zr}$  refractaire) comme nous le verrons plus loin.

2) dans le cas d'irradiation de durée plus faible, ( $\tau \ll 10\ 000\ \text{MWj/t}$ ), on peut évidemment choisir d'autres P.F.

#### II.5 - Détermination de la puissance :

##### II.5.1 - puissance moyenne fournie :

Depuis l'origine de l'irradiation, la puissance - ou l'énergie libérée par unité de temps - donc les fissions créées, donnent naissance à des isotopes qui s'accroissent par formation et décroissent par radio-activité ou filiations.

Connaissant le calendrier des irradiations, et les importances relatives des paliers de fonctionnement enregistrés, on peut calculer les activités des différents produits de fission à un instant quelconque.

Le programme PICFEE effectue ce travail. Il intègre les évolutions des activités au cours du temps, à partir de la contribution élémentaire de chaque nuclide fissile.

Parallèlement, l'activité des P.F. est mesurée, comme précédemment. Le rapport entre valeurs mesurées et valeurs calculées des activités des produits de fission fixe le niveau de puissance réelle.

$$\frac{A_{\text{mesurée}}}{A_{\text{calculée}}} \text{ dps/cm} \times \text{puissance entrée} = \text{puissance réelle W/cm}$$

Le défilement continu donne la distribution de la puissance le long de l'élément. La sommation donne la puissance moyenne.

Le choix des P.F. utilisés dépend des conditions de fonctionnement et du temps de refroidissement.

$^{95}\text{Zr}$ ,  $^{103}\text{Ru}$  conviennent dans la plupart des cas.

##### II.5.2 - Comparaison de résultats :

Nous avons comparé nos résultats à ceux obtenus par d'autres méthodes, sur une même expérience :

bilan thermique :	4 770 MWJ/t
Code APOLLO/collectrons :	4 250 "
options isotropiques :	4 380 "
gammamétrie :	4 300 "

### II.5.3 - détermination de la puissance instantanée :

La puissance est évolutive. A un instant quelconque, en cours de vie du combustible, elle est liée au nombre d'atomes fissiles restant à ce moment. Or, les P.F. à vie courte (quelques heures) sont directement représentatifs de ces noyaux fissiles restants.

Si l'on laisse refroidir un combustible et que l'on procède à une brève réirradiation, la répartition d'activité est conforme à la distribution des atomes restants et la mesure des P.F. à vie brève donne accès à la puissance finale.

Généralement, nous utilisons  $^{134}\text{I}$ , 52 mn, 884 keV (68 %  $\gamma$ )  
 $^{92}\text{Sr}$ , 2,7 h, 1384 keV (90 %  $\gamma$ )

Les rendements de fissions de ce dernier sont très différents pour  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$  (5,9 % et 3 %) et favorisent la détermination de la répartition des fissions  $F_5$  et  $F_9$  :

$$A_{134} = \alpha_1 F_5 + \beta_1 F_9$$

$$A_{92} = \alpha_2 F_5 + \beta_2 F_9$$

Les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  tiennent compte des rendements de fissions, des durées d'irradiation et de refroidissement. Ils sont calculés à l'aide du programme PICFEE à partir du diagramme de puissance.

Les activités  $A_{134}$  et  $A_{92}$  sont déterminées expérimentalement.

On calcule le rapport

$$\frac{F_5}{F_9} = \frac{\frac{\beta_1}{\beta_2} - \frac{A_{134}}{A_{92}} \text{ mes}}{\frac{\alpha_2}{\beta_2} \cdot \frac{A_{134}}{A_{92}} \text{ mes} - \frac{\alpha_1}{\beta_2}}$$

ainsi que la puissance comme il a été expliqué précédemment.

### II.6 - Continuité des résultats :

Puissance et énergie ne sont pas indépendantes.

La valeur de la combustion massique  $\tau$  est liée à la puissance par la

durée de l'irradiation :

$$t = \frac{P \times t}{M}$$

Comme nous l'avions signalé, il est intéressant de sécuriser les résultats de taux de combustion par l'utilisation d'un P.F. de comportement représentatif du combustible (Zr) en tenant compte des décroissances (par le programme puissance PICFEE).

Cette relation laisse toute liberté de choix de l'isotope à optimiser sur le spectre  $\gamma$ , selon les conditions d'irradiation et de refroidissement, selon que l'on s'intéresse à la totalité de l'irradiation ou à un moment particulier, au nombre d'atomes brûlés ou au nombre d'atomes fissiles restants.

#### CONCLUSION.

L'installation de spectrométrie gamma d'OSIRIS permet un bilan de mesures qualitatives et quantitatives complet.

Particulièrement conçu pour le suivi des expériences irradiées à OSIRIS, le banc  $\gamma$  est limité à supporter 500 kg et à explorer une longueur de 1,20 m. Mais ces contrôles peuvent concerner des éléments provenant de l'extérieur, des réacteurs de puissance. Des aménagements sont réalisables pour s'adapter à des problèmes différents.

L'intérêt de ces mesures, non destructives, souples d'emploi, rapides à mettre en oeuvre, polyvalentes, est d'intervenir en cours de vie des combustibles. Il est aisé de suivre la distribution des produits de fissions "marqueurs" dans l'espace et l'évolution dans le temps, donc de surveiller le combustible, de contrôler la tenue de la gaine, de repérer la contamination des circuits, d'établir un diagnostic complet, de permettre à tout moment d'intervenir sur le cours de l'irradiation.

Quantitativement, la détermination des combustions massiques et puissances linéaires est obtenue avec une précision satisfaisante pour le suivi, bien que les conditions de mesure soient moins confortables car moins conventionnelles que celles des méthodes destructives, sans doute plus précises pour le résultat final. Mais nous avons par contre



une sécurité absolue, liée à la conception de défilement continu, qui allège l'interprétation et recueille la totalité des informations.

L'installation se révèle adaptée aux exigences actuelles en matière de sécurité des réacteurs et d'économie de combustible. Elle a permis de nombreux examens et fourni des renseignements précieux sur des dispositifs divers, échantillonnant les différents types de combustibles des différentes filières.



\*

\*

\*