

N° 93 00 50 60

FR 9402801

CONFIDENTIEL - 11792

Euratom Working Group on Reactor Dosimetry - Working Group on Reactor Dosimetry for VVER Reactors

Workshop on "Pressure Vessel Surveillance Programmes and their Applications"
REZ, Prague, République Tchèque. 16-18 mars 1993

DOSIMETRIE RETROSPECTIVE (OU AUTO-DOSIMETRIE): APPLICATION AU PARC ELECTRONUCLEAIRE FRANCAIS

R. Lloret

CEA/CEN-Grenoble, SAPR, 85X, F-38041 Grenoble Cédex

Résumé

L'équipement de métrologie des doses neutroniques, prévu à la conception d'un réacteur de production, peut n'être pas suffisant pour couvrir tous les besoins de connaissance durant le cycle de vie d'une tranche électronucléaire. On utilise alors quelquefois le matériau irradié lui-même pour fournir les informations sur la dose qu'il a reçue, en le déchiffrant comme un dosimètre.

Dans cette communication, on donne le principe d'une telle dosimétrie sur prélèvement en soulignant ses difficultés comparées à une dosimétrie de surveillance classique. On décrit brièvement quelques applications de cette technique réalisées ces dernières années à l'occasion de problèmes soulevés par le fonctionnement ou le démantèlement de réacteurs, sur des matériaux tels que épées de G2, G3, et en Réacteur à Eau Pressurisée, vis de baffle, cuve et éprouvettes de surveillance, gaines de crayons de contrôle. Dans chaque cas, on donne une évaluation du niveau de performances réalisé.

Introduction

En oeuvrant en dosimétrie de surveillance des Réacteurs à Eau Pressurisée (REP), il nous arrive d'être consulté de la manière suivante: "A tel stade de fonctionnement de tel réacteur électrogène, tel problème affecte tel matériau de tel élément de structure. Malheureusement, aucune instrumentation existante ne peut fournir une information sur le niveau d'irradiation qu'il a reçu *si ce n'est le matériau lui même*. Si je vous soumetts à analyse un échantillon de ce matériau, pouvez-vous en déduire les fluences neutroniques et (pourquoi pas ?) les dommages radio-induits ?"

En d'autre terme, on nous demande de faire une dosimétrie sans dosimètre, une autodosimétrie en quelque sorte. On peut dire encore qu'on nous demande de reconstituer un certain passé, de déchiffrer la trace de l'irradiation dans un échantillon comme un archéologue déchiffrerait l'histoire inscrite dans un fragment de poterie. Le terme de "dosimétrie rétrospective" [1] convient bien à cette démarche. Il en sous-entend les caractères, ceux d'un moyen mis en place après coup faute de mieux, d'une histoire reconstituée, d'une enquête réunissant tous les indices et recoupements possibles, aboutissant à un résultat qui ne peut prétendre à la certitude d'une mesure conçue dans ce but.

Pour l'avoir pratiquée, aussi bien pendant l'exploitation d'une tranche qu'à l'occasion de son démantèlement, on se propose ici de préciser sous quelles conditions l'on peut faire appel

à cette technique en la décrivant brièvement. On en soulignera les limites. On citera les applications rencontrées ou prévues dans un avenir proche sur le parc électronucléaire français.

Principe de la Dosimétrie

Un dosimètre est constitué par un nombre *connu* d'atomes ayant subi une séquence d'irradiation d'une certaine durée, à l'issue de laquelle la radioactivité induite est mesurée, après un délai de "refroidissement", pendant lequel celle-ci décroît. Cette radioactivité est le reliquat d'une information acquise durant la séquence d'irradiation avec une vitesse ou *taux de réaction* proportionnelle au flux incident, le coefficient de proportionnalité étant une *section efficace*. A tout instant une partie de cette information disparaît par décroissance radioactive. L'objectif est de caractériser l'irradiation en déterminant la fluence neutronique reçue: aussi l'idéal est de disposer d'un dosimètre satisfaisant à la fois trois critères:

- une période de décroissance radioactive grande devant la durée d'irradiation, gage d'une bonne mémoire des événements,
- une section efficace adaptée au domaine d'énergie d'intérêt,
- un nombre d'atomes-cibles bien connu, par exemple par pesée, et qui varie peu en cours d'irradiation.

Ces trois règles sont, en réalité, difficiles à tenir même dans le cas de la dosimétrie de surveillance [2]: certains dosimètres ont une bonne couverture spectrale mais une période trop courte (Nickel et même Fer), d'autres une période mieux adaptée mais une couverture spectrale située trop vers les hautes énergies (Cuivre). On a donc dû développer des procédés pour en tirer parti malgré ces inadaptations.

Le premier de ces procédés est bien évidemment de réaliser une étude neutronique fournissant la section efficace *effective* de la réaction, c'est-à-dire précisant dans le plus grand domaine énergétique possible le spectre neutronique de l'irradiation. On demande alors au dosimètre de calibrer en quelque sorte cette forme supposée connue de la répartition énergétique, en donnant par exemple *l'intensité du flux*, c'est-à-dire une surface bien délimitée, sous cette forme, entre deux énergies. Plus on tire parti de cette information neutronique, et plus la mesure pourra donner un sens en dehors de sa zone de couverture énergétique. C'est ce qui se passe déjà avec la surveillance de routine, où nous disposons de dosimètres répartis de 0,6 à 10 MeV (Neptunium, Uranium, Nickel, Fer, Cuivre, et bientôt Niobium). Cette relative redondance permet

- de confirmer, d'infirmer ou même d'améliorer la forme du spectre,
- de recouper les informations,
- de déduire un taux de réaction (par exemple un taux de dommages) dû à des neutrons situés dans et en dehors (en-dessous) de la plage énergétique explorée,
- d'évaluer un degré de confiance à accorder au résultat.

Le second procédé est d'analyser le plus finement possible l'évolution dans le temps de la source d'irradiation. Comme dans le cas précédent, on peut penser que si on dispose d'une séquence d'irradiation *relative* rigoureuse, un seul dosimètre, même de période courte suffit à calibrer cette séquence relative en absolu. La séquence de base est le diagramme de fonctionnement de la tranche, par exemple l'énergie journalière. Autrement dit, on fait l'hypothèse que le flux est proportionnel à la puissance instantanée du réacteur, ce qui est vrai au premier ordre. Divers raffinements sont apportés à cette hypothèse, en tirant de la séquence de *puissance globale* une séquence de *flux local*, légèrement différente, au moyens de termes

correctifs appropriés. On sait aussi tenir compte d'une modification du spectre en cours d'irradiation, donc d'un changement de section efficace pour autant que ces perturbations soient connues en relatif. Le code ACTIGE (et ACTICHO) a été écrit à cette fin (Fig. 1). On y a introduit des effets de cycle hors équilibre, de facteur de forme axiale, de température etc... Il est par contre difficile d'évaluer une incertitude associée à cette démarche.

Principe de la dosimétrie sur prélèvement

Ces règles et procédés sont-ils applicables à la dosimétrie sur prélèvement ? Oui, mais avec des différences appréciables, concernant la composition et l'histoire de l'échantillon. La mesure de radioactivité, bien que pouvant devenir plus complexe à cause des interférences possibles, reste inchangée.

- L'échantillon prélevé est un matériau de structure, il n'a pas la pureté du dosimètre placé là dans ce but. Se pose donc le problème de sa nature et de la connaissance de sa composition. Le zircaloy, par exemple, n'a pu être employé à cet usage, par contre certains matériaux se laissent aisément extraire une information valable. C'est le cas des aciers. Mais la composition de l'échantillon - y compris ses impuretés - doit le plus souvent être *caractérisée*, l'incertitude sur le nombre d'atomes cible se propageant directement au résultat. C'est presque toujours le cas des impuretés de cobalt, dont seulement l'ordre de grandeur est fourni dans la documentation. On a quelquefois recours alors à des méthodes radiochimiques [3] [4] [5] ou de pesée nucléaire.

- L'échantillon prélevé a peut-être une histoire plus compliquée que celle décrite par le fonctionnement du réacteur: cela peut être le cas d'un échantillon mobile (par exemple attaché à un équipement mobile) ou dont la composition varie en cours d'irradiation par exemple par dépôt de surface. Une modélisation du passé en forme de l'histoire du flux relève alors d'hypothèses raisonnables et doit s'accompagner d'incertitudes prudentes. Encore une fois, cette modélisation ne se substitue pas à la mesure, il suffit qu'elle décrive les épisodes relativement les uns aux autres. C'est là que la précarité de certaines informations fait penser aux méthodes de l'archéologie, rétrospectives par nature !

Réactions envisageables

Elles sont regroupées dans le tableau de la page suivante.

Les radioisotopes ^{54}Mn , ^{58}Co et ^{60}Co sont presque toujours présents, avec en général comme on l'a dit, une incertitude importante sur la teneur en Cobalt. ^{51}Cr et ^{59}Fe ne sont plus mesurables au delà d'un an et demi de refroidissement. Les autres isotopes n'ont pas été rencontrés ou exploités en France. Parmi eux, le ^{93}Nb est très intéressant [1] [5].

	Elément	Réaction	Domaine d'énergie	Radioisotope formé	Période
1	Cr	$^{50}\text{Cr}(n,\gamma)$	$\sim < 0,1 \text{ eV}$	^{51}Cr	28j
2	Fe	$^{58}\text{Fe}(n,\gamma)$	thermique+épith.	^{59}Fe	45j
3	Co	$^{59}\text{Co}(n,\gamma)$	thermique+épith. $\sim 120 \text{ eV}$	^{60}Co	5,27a
4	Ni	$^{58}\text{Ni}(n,p)$	rapide $> 2.8 \text{ MeV}$	^{58}Co	70,8j
5	Fe	$^{54}\text{Fe}(n,p)$	rapide $> 3 \text{ MeV}$	^{54}Mn	313j
6	Nb	$^{93}\text{Nb}(n,n')$	rapide $> 1 \text{ MeV}$	^{93}Nbm	16,1a
7	Nb	$^{93}\text{Nb}(n,\gamma)$	thermique+épith.	^{94}Nb	2.10^4a
8	Ta	$^{181}\text{Ta}(n,\gamma)$	thermique+épith.	^{182}Ta	215j
9	Ti	$^{46}\text{Ti}(n,p)$	rapide $> 4 \text{ MeV}$	^{46}Sc	84j

Les applications au parc électronucléaire français

On soulignera, dans chaque cas cité, les points d'intérêt.

• Les épées de G2-G3.

Le premier cas rencontré ne concerne pas un REP, mais deux réacteurs UNGG après leur mise à l'arrêt [6]. Les calculs des flux durant leurs fonctionnements avaient été réalisés par le SERMA/LEPP, déjà associé à nous dans le cadre de la surveillance des REP. L'objectif était d'ajuster le flux calculé - qui s'étendait sur 6 ordres de grandeur - en un point mesurable, qui se trouvait être une structure en acier servant au chargement (en continu) du combustible, en forme d'épée de grande dimension. Sa mobilité n'était pas vraiment un problème car l'épée restait en contact avec un élément combustible. L'activité a été mesurée par gammamétrie absolue avec défilement. Le résultat permit d'ajuster d'un facteur 2 les calculs des bilans d'activité en vue du démantèlement. Même modeste, cet acquis avait un enjeu important.

• Les vis de baffle

Des copeaux de masse $\sim 1 \text{ mg}$ ont été obtenus par perçage sur tête et fût de deux vis de cloisonnement d'un REP 900, en acier austénitique écroui, dont la composition était bien déterminée sur la spécification d'approvisionnement, et vérifiée et précisée en laboratoire chaud du Service de Contrôle des Matériaux Irradiés de l'EDF. Après une irradiation de 10 années calendaires et un refroidissement de 17 mois, les copeaux, pesés au μg près, accusaient des activités de 10^5 à 2.10^7 Bq/mg , en ^{51}Cr , ^{58}Co , ^{54}Mn , ^{59}Fe , et ^{60}Co . Les spectres neutroniques utilisés proviennent de spectres calculés au SERMA/LEPP avec le code SN 1D. Ils sont diversement corrigés pour tenter de tenir compte de particularités géométriques. Le diagramme d'irradiation considéré est celui de la puissance globale du réacteur. Les sections efficaces de tous les mécanismes concourant aux activités, ainsi que celles des productions d'hélium et d'hydrogène par réaction (n,α) et (n,p) ont été soigneusement évaluées en tenant compte du maximum d'informations disponibles, de la température, de l'autoabsorption, de la consommation etc...

Sur les fluences rapides, le recouplement Fer-Nickel (réactions 4 & 5), aux activités dues essentiellement aux mêmes neutrons, est excellent avec des écarts de 1 à 6% seulement, malgré la différence des périodes. Ceci permet d'estimer raisonnable une incertitude de 7% sur les fluences et 10% sur les dommages en dpa et production d'hydrogène. Sur les fluences thermiques et épithermiques, l'accord entre les produits des Fe-Cr-Ni est, selon la dureté du spectre, dans une plage de quelques % à +/- 20%. La production d'hélium qu'on en déduit atteint ici des valeurs considérables (35 ppm). Elle provient - hors consommation du bore - surtout des neutrons thermiques et épithermiques, sur le ^{59}Ni formé en cours d'irradiation. Il est alors difficile de lui attribuer une incertitude.

- Flux sur la cuve et facteur de flux éprouvettes-cuve.

Ces paramètres ont été obtenus en 1988 sur le réacteur CHOOZ A (REP 600 MWe) et les résultats publiés [3]. Deux prélèvements ont été réalisés sur le revêtement d'acier inoxydable (ou beurrage) de la cuve (Fig. 2), après un brossage énergétique pour faire disparaître le dépôt qui en affecte la surface. Ont également été analysés des échantillons prélevés sur des éprouvettes de surveillance (Charpy) au voisinage de l'entaille. On a pratiqué une analyse radiochimique de leurs compositions. elle n'a pas été totalement confirmée par une pesée nucléaire en réacteur d'essai (MELUSINE) dont les résultats, très précis, ont été préférés. Le traitement chimique pratiqué à l'occasion de cette analyse des échantillons, avait également pour but de séparer les éléments et notamment de retirer, lors de la mesure du ^{54}Mn , le masque important constitué par une forte activité en ^{60}Co . L'analyse neutronique utilisait le code TRIPOLI. Ces investigations poussées, basées sur la mesure du ^{54}Mn ont permis d'obtenir un accord calcul-mesure meilleur que 10% et ont participé au redémarrage du réacteur, par la confiance que les autorités de sûreté leur ont accordée. Il faut souligner le caractère direct de ces mesures, au cours desquelles étaient effectivement mesurés des taux de réaction à la surface interne d'une cuve, ainsi que des rapports éprouvettes-cuve, c'est bien là leur objectif essentiel; ce type d'information aurait été recherché, comme dans tout cas difficile, quand bien même la France aurait été équipée d'une maquette ou "benchmark" à cet usage.

- Dommages subis par des gaines de crayon de contrôle.

Des gaines en acier, de crayons de contrôle en Ag-In-Cd, irradiés 8 cycles dans un REP 900 (grappe "grise") pour l'un, et 4 cycles (grappe "noire") dans un REP 1300, pour l'autre, ont été objets d'analyse. Les prélèvements, également sous forme de copeaux de l'ordre du mg, ont été réalisés entre 55 et 175 mm du bas du crayon. L'analyse de ce cas peut être considéré comme une gageure, par le nombre de difficultés qu'elle rassemble. Ici la caractérisation du matériau de départ, d'après les certificats d'approvisionnement, est suffisante eu égard aux incertitudes créées par les conditions neutroniques. Celles-ci sont extrêmement perturbées. En effet l'échantillon est - quand la barre est bien insérée - irradié dans le champ neutronique à très fort gradient régnant à la surface d'un absorbant, lequel est plongé dans des assemblages combustibles successifs, d'enrichissements et d'épuisements différents. Il a été établi cinq situations-type et pour chacune d'elle, des calculs de transport à 2 dimensions APOLLO 2 (Fig. 3) ont été nécessaires pour "proposer" des sections efficaces réalistes. Par ailleurs, l'insertion, en fonctionnement normal, ne se situait que dans la partie la plus haute du coeur: on a donc tenu compte de la répartition axiale de la puissance pour pondérer - localement pour le flux - l'histoire du réacteur décrite en termes de puissance globale (Fig. 4). On s'est servi, pour réaliser cette pondération, des cartes de flux axiales obtenues à fréquence mensuelle par les chambres à fission mobiles de l'instrumentation in-core. L'ensemble de ces manipulations relève plus d'un art que d'une technique, mais réussit à introduire dans la résolution du problème le

maximum d'informations objectives, afin d'interpréter correctement les activités mesurées. Le résultat est - pensons-nous - une caractérisation en termes de fluences neutroniques et de dommages à deux ou trois dizaines de pour-cent près, au prix d'un travail de 6 mois pour une personne expérimentée et disposant de moyens de laboratoire et de calcul. Ceci pour fixer les idées de ce qui est peut-être la limite de complexité que cette technique peut envisager.

• Démantèlement d'un REP.

Le démantèlement d'un réacteur peut être l'occasion de progresser dans des connaissances d'accès difficile [7]. Ce n'est pas une nouveauté. Il est envisagé de demander à la dosimétrie rétrospective d'apporter sa contribution à la caractérisation d'un certain nombre d'échantillons prélevés après la mise à l'arrêt définitif du REP Chooz A, là où l'irradiation peut avoir laissé des traces. Les objectifs métallurgiques et neutroniques d'une telle action sont nombreux, plutôt ici au profit des études de fragilisation que de la protection et du démantèlement. L'occasion est belle de disposer des matériaux réels, cuve, métal de base, revêtement et soudures, face interne et externe ou même traversée complète, structures internes, cloisonnement etc..., mais la dosimétrie ne pourra faire son office que si le prélèvement des échantillons ne tarde plus.

Conclusion

On a décrit comment des méthodes de dosimétrie employées dans la surveillance des réacteurs à eau pressurisée pouvaient être appliquées à des examens complémentaires à ceux décidés à la conception. Il s'agit en fait d'une extension des méthodes, qui restent basés sur une interprétation de mesures d'activités, exigeant la maîtrise de la composition de l'échantillon, de l'histoire relative des flux et des conditions neutroniques (spectres) de l'irradiation. Les procédures d'analyses sont à adapter au cas par cas. Les exemples d'application récente sur le parc électronucléaire français qui sont décrits, donnent un éventail des niveaux de confiance qu'on peut accorder à ces méthodes, qui en tout état de cause présentent un intérêt indéniable en cas de nécessité.

Références.

- [1] M F Banham, A J Fudge, J A Tibbles, B E Sheldon, R Fleck, R A Holt. **The Application of Niobium for Retrospective Determination in CANDU Reactors.** *Proceedings of the Seventh ASTM-EURATOM Symposium on Reactor Dosimetry, Strasbourg, France, août 1990.* Kluwer Academic Publ. p. 749.
- [2] R Lloret, A Bévilacqua, JJ Bonnin, JC Nimal, L Bourdet, F Hédin, JC Guilleret. **Determination of the Doses absorbed by the CHOOZ A PWR Vessel.** *Ibid.* p. 197.
- [3] C Rieg. **Surveillance des effets de l'irradiation sur les aciers de cuve des réacteurs à eau pressurisée d'Electricité de France.** *Présenté au Groupe de Travail EURATOM de Dosimétrie en Réacteurs,* Commission des Communautés Européennes, avril 1992, JRC Petten.
- [4] G Auboin, J Laverlochère. **Séparations par résines échangeuses d'ions appliquées à l'analyse par radioactivation.** Rapport CEA R/2359.
- [5] B Bäs, H Karnani. **Use of Niobium for Accurate Relative Fast Neutron Fluence Measurements at the Pressure Vessel in a VVER-440 NPP.** *Reactor Dosimetry*, 319-325. JP Genthon & H Röttger Edts, . D Reidel publishing Company.
- [6] H Petitcolas, E Junod. **Dismanteling G2 and G3 Reactors: Computation of Activities in Graphite, Structures and Impurities, on shut down and during 100 years after shut down of the Reactor.** *ENC'90, Lyon, France.* ENS/ANS Foratom Conference Transactions. Verlag TÜV Rheinlang. ISBN 3-88585-865-7, p. 2380-2387.

[7] G Prillinger. Neutron Exposure of GUNDEMMINGEN-A Pressure Vessel Trepan. *Reactor Dosimetry, Methods, Applications and Standardization. ASTM STP 1001*. H Farrar IV and E P Lippincott, Eds., American Society for Testing and Materials, Philadelphia, 1989, pp. 165-174.

Fig. 1 - Flow Chart of the ACTIGE-ACTICHO Code

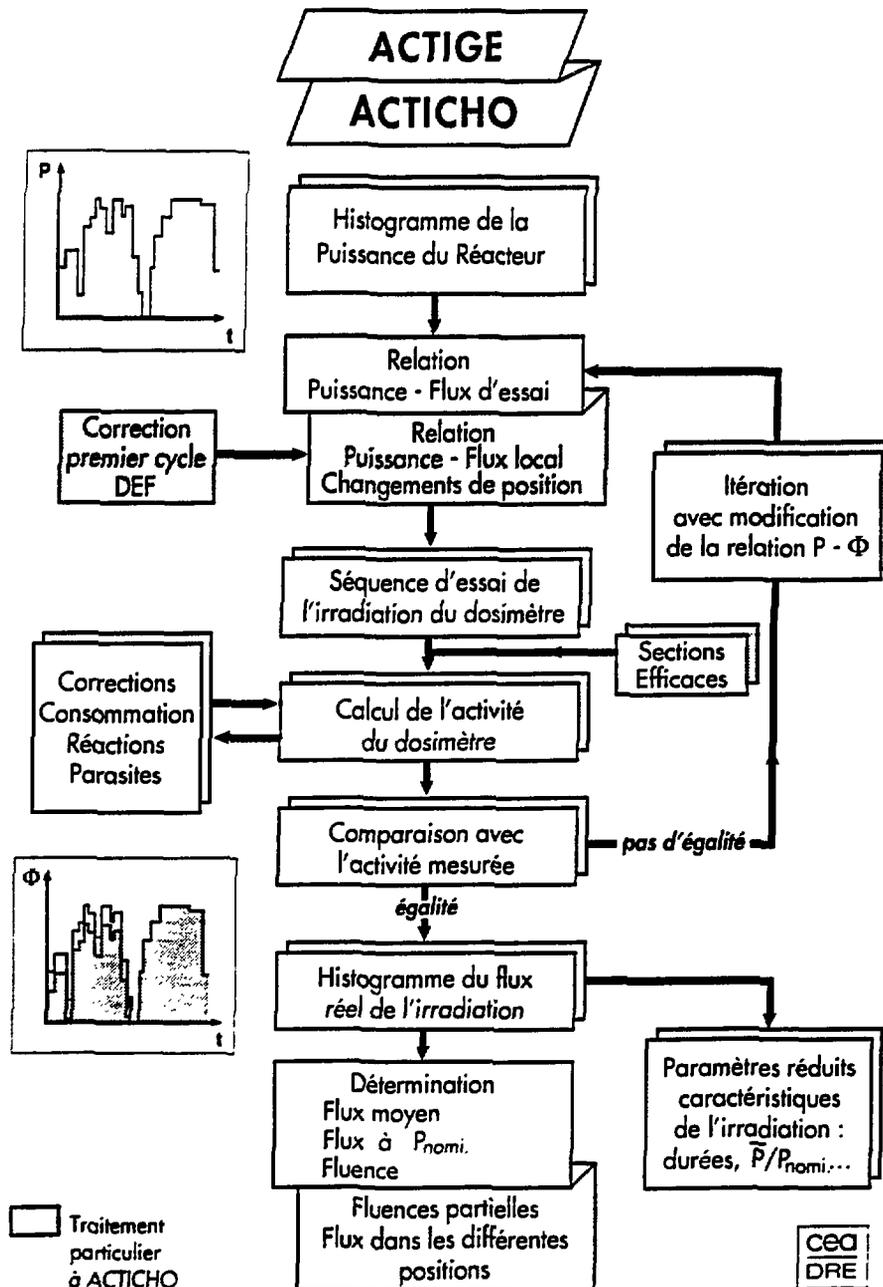


Fig. 2 - Appearance of the chips scrapped from the inner wall of U loop Vessel (before / after compacting)

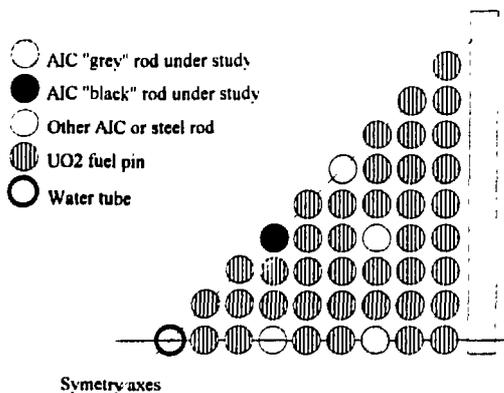
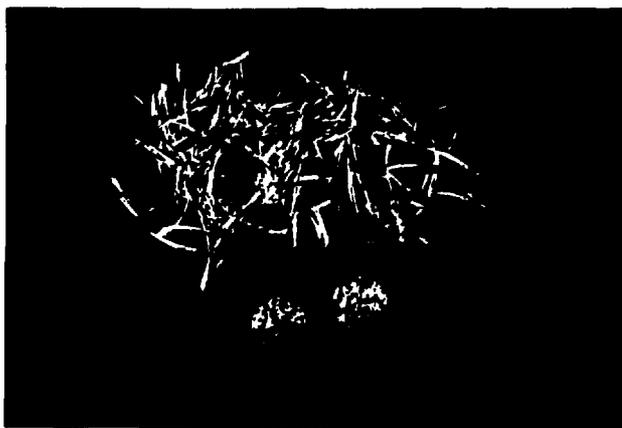


Figure 3.
Modelisation of 1/8th assembly
with absorbing pins

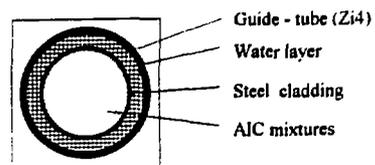


Figure 3 bis.
Modelisation of the AIC cell under study (detail)

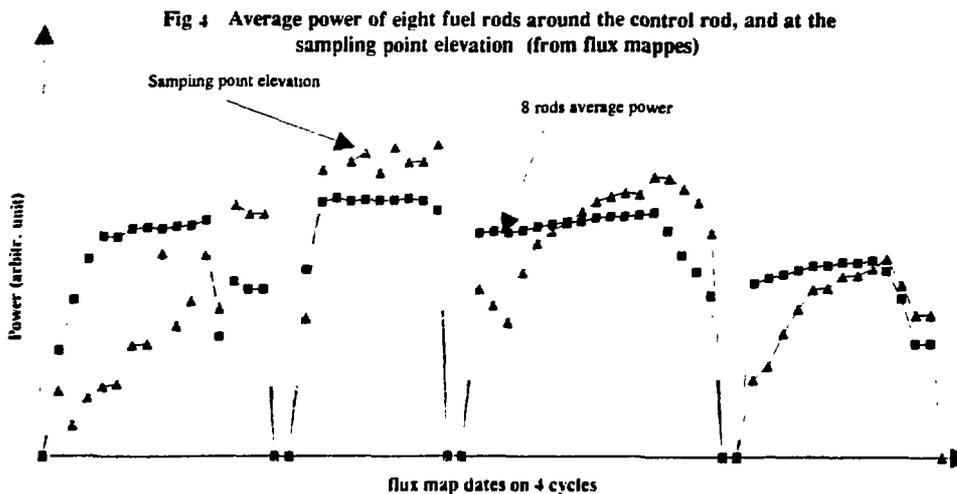


Fig 4 Average power of eight fuel rods around the control rod, and at the sampling point elevation (from flux mappes)