

MESURES NON DESTRUCTIVES DES QUANTITES DE GAZ DE
FISSION DEGAGES DANS UN ELEMENT COMBUS-
TIBLE IRRADIE EN NEUTRONS RAPIDES

par M. FROMONT
M. KAUFMANN

1. INTRODUCTION.

A bien des égards la connaissance précise du taux de relachement des gaz de fission est nécessaire pour les éléments combustibles de la filière à neutrons rapides :

- pour le dimensionnement optimal des chambres d'expansion des aiguilles (fluage des gaines),
- pour une bonne description de la thermique du combustible,
- pour étudier la dispersion de la matière fissile lors des accidents pris en compte par la Sûreté.

Traditionnellement, cette grandeur est obtenue par une méthode destructive consistant à percer les aiguilles et à prélever quantitativement les gaz. Cette technique, bien que présentant l'avantage d'accéder à des analyses isotopiques éventuelles, a par contre l'inconvénient d'être destructive et relativement longue, ce qui fait limiter l'examen à un très faible nombre d'aiguilles par assemblage.

Pour toutes les raisons évoquées ci-dessus, nous développons une méthode non destructive fondée sur l'analyse gammamétrique de la raie du ^{85}Kr contenu dans le plénum des aiguilles.

.../...

2. ANALYSE DU PRINCIPE.

Le principe de la méthode exposée ici repose sur la propriété des gaz de fission stables ou de longue période radioactive d'avoir un même taux de relâchement hors du combustible. L'analyse quantitative de l'un des quelconques isotopes du Xénon ou du Krypton doit permettre d'accéder au volume total des gaz relâchés dans les vases d'expansion d'une aiguille. En effet, pour un combustible à teneurs données en ^{235}U et ^{239}Pu , les diverses proportions des isotopes dans le mélange gazeux sont connues, ainsi que leurs variations respectives, d'ailleurs mineures, avec le taux de combustion, du fait de captures neutroniques par certains d'entre eux.

Parmi ces isotopes, seul le ^{85}Kr , émetteur gamma, dispose d'une période ($T = 10,7$ ans) compatible avec les temps de refroidissement des aiguilles au moment de leurs examens. Il a par contre un rendement de fission faible, associé à une transition gamma à 514 KeV de faible intensité également, qui peut être masquée par d'autres raies autour de 511 KeV. Ces émissions gênantes ont plusieurs origines :

- la raie gamma du $^{106}\text{Ru-Rh}$ ($T = 369$ jours) à 511,9 KeV existant au droit du combustible,
- l'effet d'annihilation des β^+ par interaction avec les électrons, qui est due essentiellement au ^{58}Co . Cet effet est moins gênant, vue la relativement courte période de cet élément ($T = 71$ jours),
- enfin, la création de paires d'électrons-positons par interaction des photons de haute énergie avec la matière, suivie de l'annihilation du positon avec émission de deux photons à 511 KeV.

Dans les conditions usuelles d'examen, la raie à 514 KeV du ^{85}Kr , mesurée au droit des vases d'expansion n'interfère avec aucune autre raie. Cependant, la mesure de son activité absolue est rendue impossible par la présence d'un très fort effet Compton attaché principalement au ^{60}Co .

On est donc amené à rechercher le ^{85}Kr dans les seuls vases d'expansion, en l'accumulant localement par cryopompage à l'azote liquide, ce qui a pour avantage d'accroître le taux de comptage propre au ^{85}Kr vis-à-vis du fond Compton inhérent à l'activation de la gaine (^{54}Mn et ^{60}Co).

3. ASPECT EXPERIMENTAL.

Le refroidissement local de la gaine à 77°K n'est pas endommageant pour l'aiguille, car il ne concerne que la portion basse du vase d'expansion inférieur, qui est quasiment hors flux rapide durant son irradiation.

On peut voir schématiquement sur la figure 1 comment s'opèrent les changements de phases du mélange He + Kr + Xe lors de la baisse de température pour une aiguille standard du réacteur PHENIX.

L'aiguille étant immergée verticalement dans un vase Dewar, le xénon se liquéfie puis se solidifie le premier et vient en grande partie se rassembler au-dessus du bouchon inférieur. Dans un second temps le krypton se condense à la surface du lingot de xénon, ce qui dans des conditions opératoires idéales éloigne le ^{85}Kr de la forte activité du bouchon de l'aiguille. A la température de l'azote liquide, la tension de vapeur du krypton solide est de l'ordre de un millibar ; en conditions stationnaires, la condensation du krypton est donc totale.

3.1. Essai préliminaire sur aiguille postiche.

Il convenait de vérifier au préalable que la cinétique de pompage des gaz enfermés dans la chambre d'expansion supérieure à travers la colonne fissile est assez rapide pour que la mesure puisse se faire dans un temps raisonnable.

Une maquette (figure 2) a été montée en laboratoire à partir d'une aiguille fissile simulée dans laquelle la colonne de pastilles en UPuO_2 a été remplacée par des pastilles en UO_2 et l'aiguille remplie d'un mélange He + Kr + Xe en proportions adéquates.

La cinétique de pompage est suivie par un capteur de pression et l'analyse de gaz faite par chromatographie à partir d'un micro-prélèvement.

Divers essais ont permis d'optimiser les conditions d'immersion pour un pompage rapide. Ils ont mis en évidence une phase rapide correspondant à l'immersion progressive, suivie d'une phase lente à niveau d'azote constant.

En immergeant l'aiguille sur 20 cm à raison de 1 cm/mn, il faut attendre 1 heure 30 pour que plus de 98 % de krypton soit piégé.

3.2. Etude sur aiguille irradiée.

Menées parallèlement aux essais sur aiguille postiche, ces essais ont utilisé des procédures d'immersion différentes, mais également performantes. Nous en présentons deux qui mettent en évidence les avantages et les difficultés de la méthode.

- Essai N° 1 :

L'aiguille PHENIX irradiée est immergée rapidement sur 10 cm de hauteur, et par évaporation partielle de l'azote, on amène le ^{85}Kr à se rassembler vers le bas de l'aiguille. Puis on ajuste le niveau d'azote liquide de façon à immerger à nouveau l'aiguille sur 10 cm environ.

L'aiguille solidaire du Dewar défile devant le collimateur du banc de spectrométrie gamma au pas de 1 cm à raison d'une minute par pas de comptage. La distribution du ^{85}Kr dans le vase d'expansion a été suivie par plusieurs défilements aller-retour, durant l'évaporation de l'azote (figure 3).

Le premier pas de comptage étant effectué au ras du bouchon, on constate que les deux premiers centimètres sont quasiment exempts de ^{85}Kr , place vraisemblablement occupée, comme prévu, par le xénon.

Le niveau d'azote liquide dans le Dewar est nettement décelable par l'absorption du rayonnement qu'il occasionne sur les raies pourtant très énergétiques (1173, 1332 KeV) du ^{60}Co . On notera que les xénon et krypton solides participent également à l'absorption de ces rayonnements ; il en est a fortiori de même de la raie à 514 KeV du ^{85}Kr qui subit l'auto-absorption et l'absorption dans l'azote liquide en particulier.

Bien que le ^{85}Kr soit principalement rassemblé sur 2 cm de hauteur, on constate que le second remplissage d'azote liquide a eu pour effet d'étaler la distribution du krypton sur 10 cm.

Cependant, il apparaît que l'activité totale du ^{85}Kr (exprimée en nombre de coups) reste sensiblement constante (défilements 1 à 4) tant que le niveau d'azote liquide est situé au-dessus des points de congélation de cet isotope. Après cette période, l'activité apparente augmente pour deux raisons : une absorption moindre dans l'azote gazeux et les mouvements d'évaporation - condensation du ^{85}Kr qui peuvent amener à compter deux ou plusieurs fois certains atomes au cours d'un même défilement.

Le dernier défilement (N° 9) traduit l'évaporation du krypton et donne la distribution du ^{60}Co dont le rayonnement n'est plus absorbé que par la paroi du vase Dewar.

- Essai N° 2 :

Dans cet essai, nous avons utilisé comme réserve d'azote liquide différents conteneurs en plastique percés à leur base de façon à figer le ^{85}Kr loin du bouchon. Incorrectement isolés, ces conteneurs ont nécessité des remplissages périodiques de façon à réaliser des conditions d'absorption comparables d'un défilement à l'autre.

Malgré une distribution du Krypton très étalée sur une dizaine de centimètres, on peut observer (figure 4) qu'à la précision de $\pm 1\%$ l'activité du ^{85}Kr est stable après 20 mn d'immersion et plus de deux heures durant.

4. CONCLUSION ET PERSPECTIVES.

Bien que non totalement comparables dans leurs procédures de mise en oeuvre, ces premiers essais menés sur aiguille irradiées ou simulées aboutissent aux mêmes conclusions :

- la cinétique de piégeage du ^{85}Kr est rapide si la hauteur d'aiguille immergée est suffisante et la vitesse d'immersion assez lente.
- la piégeage du krypton est total dans un temps assez court.

Cette procédure d'immersion devra être encore optimisée de façon à concentrer le krypton sur une hauteur d'aiguille minimale, tout en réduisant la quantité de gaz assujettie au régime lent de condensation.

La mesure quantitative de l'activité du ^{85}Kr et par déduction celle du volume de xénon et krypton dégagés peut être obtenue de deux façons :

- soit en se référant à l'activité d'un étalon connu introduit en cellule et en effectuant les corrections d'absorption signalées plus haut.
- soit en établissant la correspondance taux de comptage du ^{85}Kr /volume Xe + Kr libéré sur des aiguilles irradiées à divers taux de combustion.

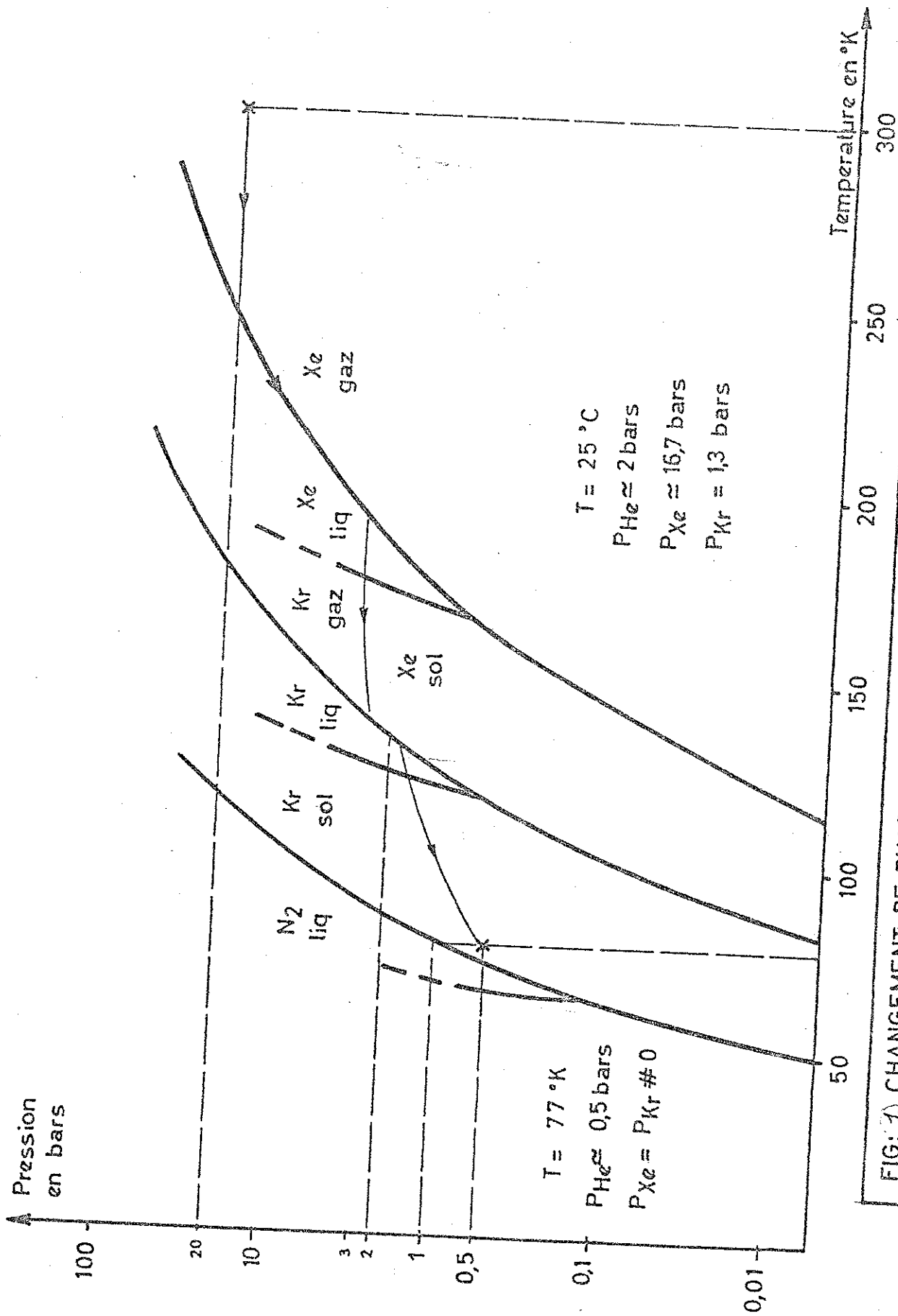
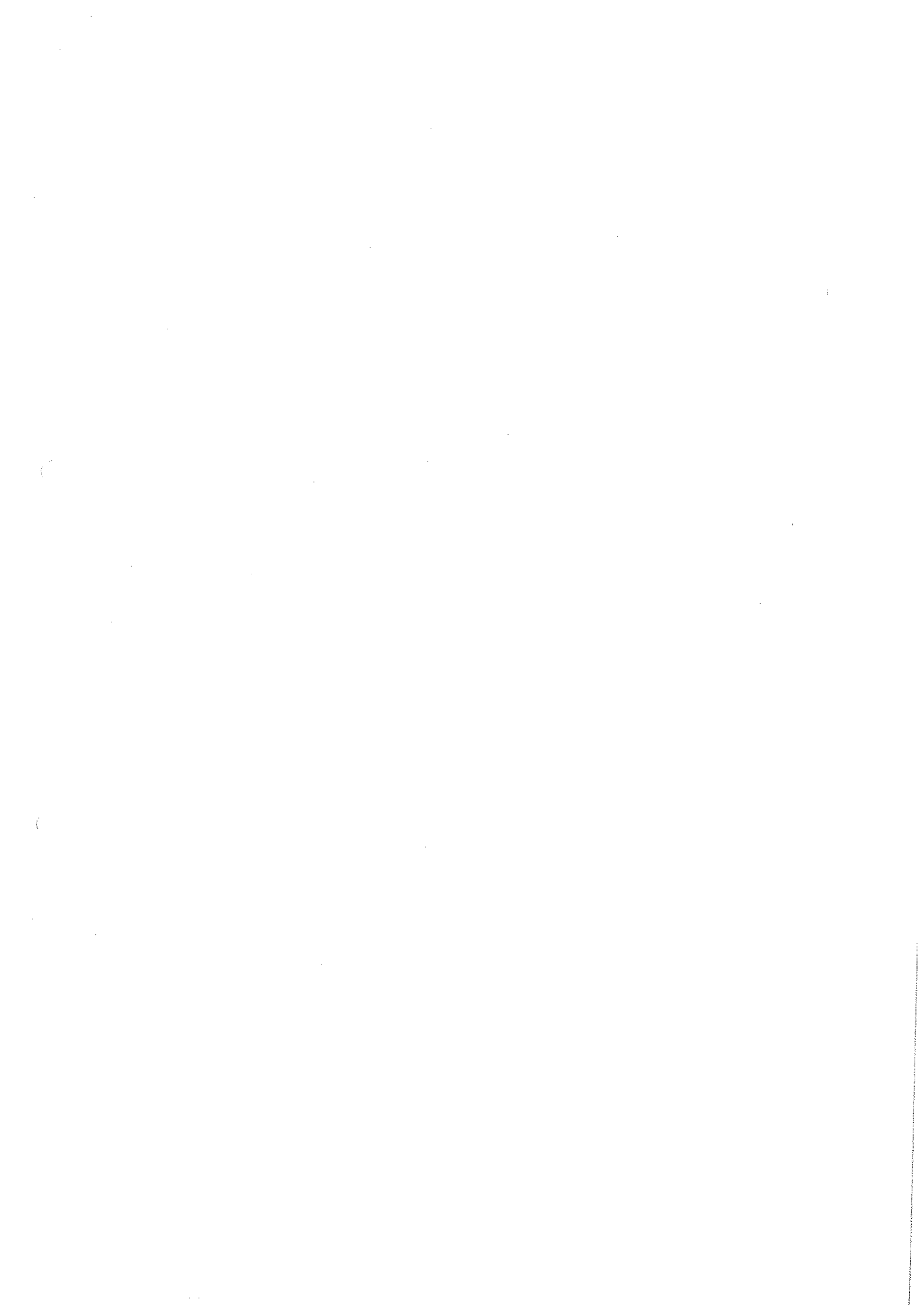


FIG: 4) CHANGEMENT DE PHASE DU MELANGE (Xe + Kr) AU COURS D'UN
 ABASSEMENT CONTROLÉ DE LA TEMPERATURE A 77°K(N₂ LIQUIDE)





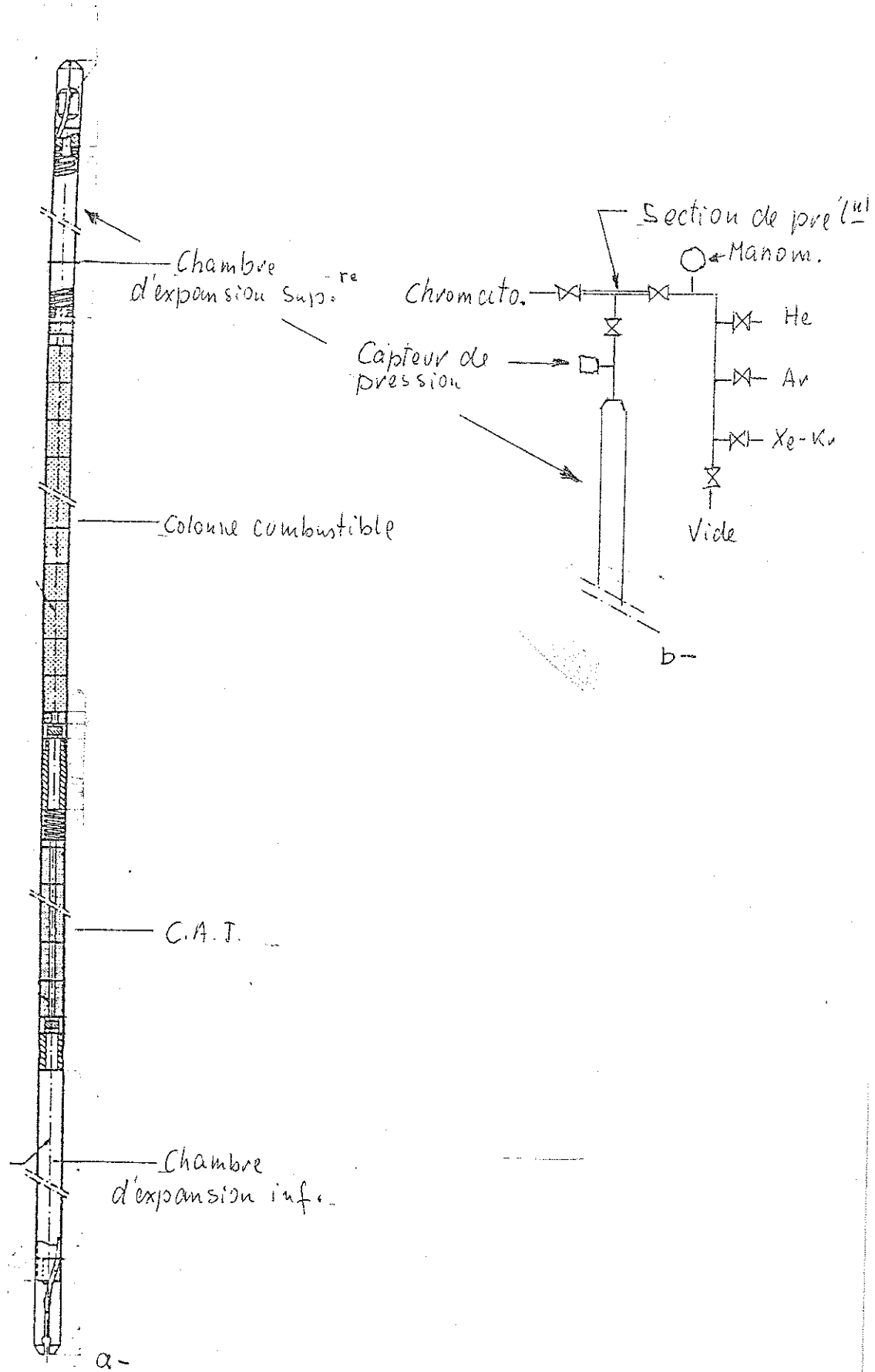


Fig. 2: a- Aiguille fissile

b- montage de la maquette

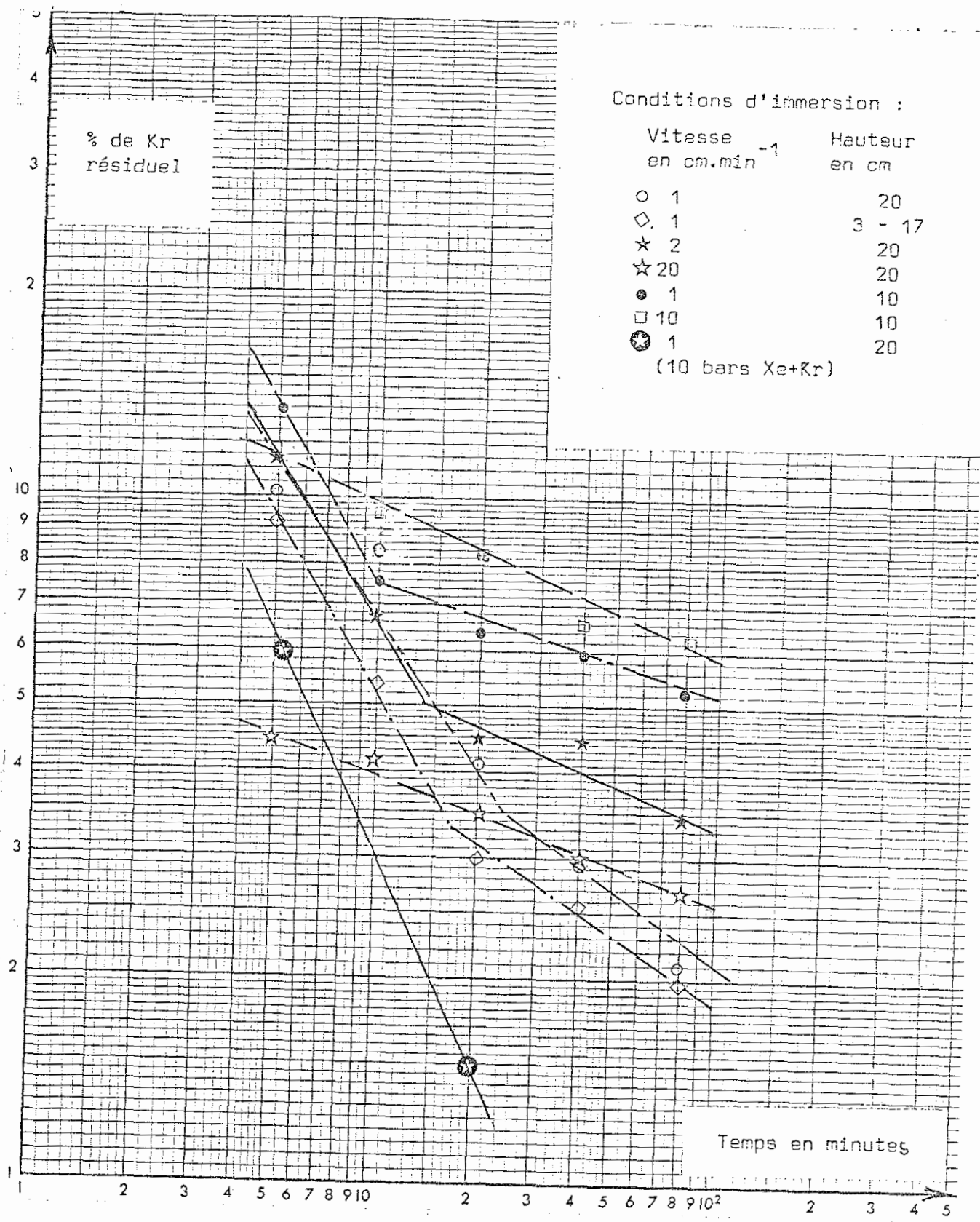
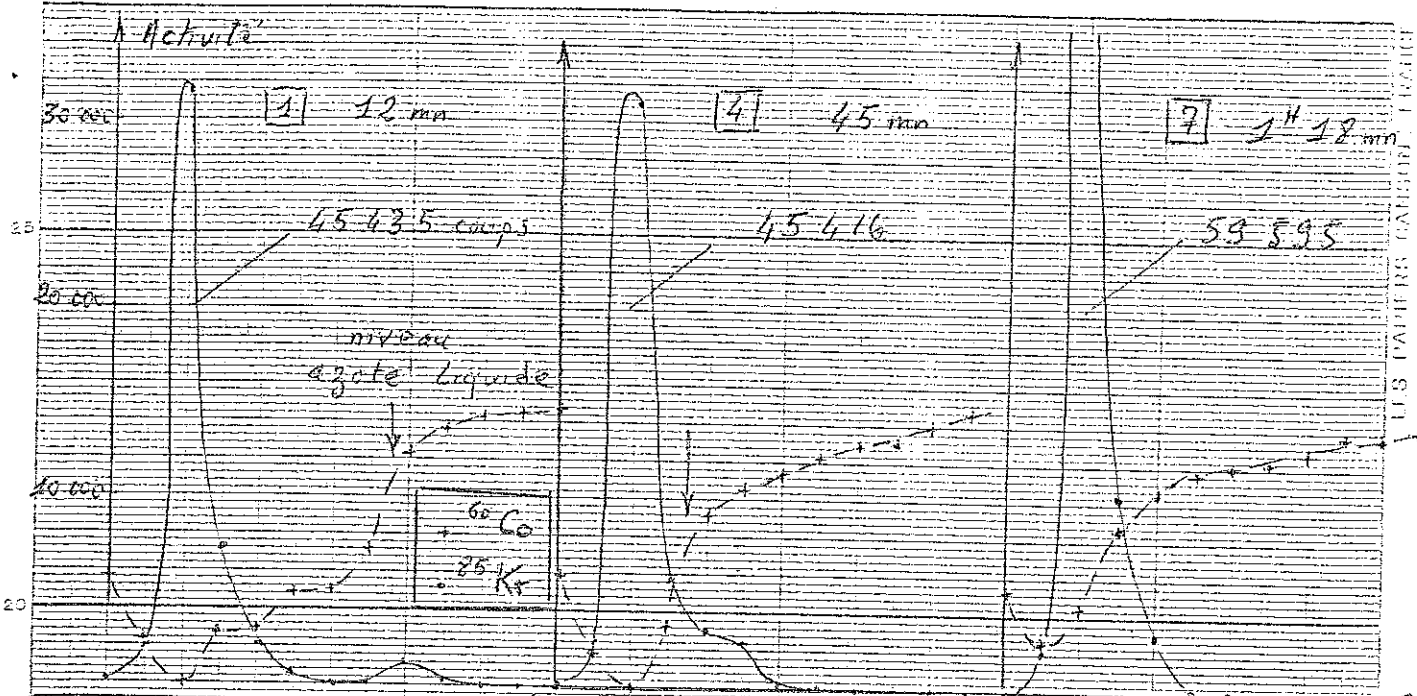
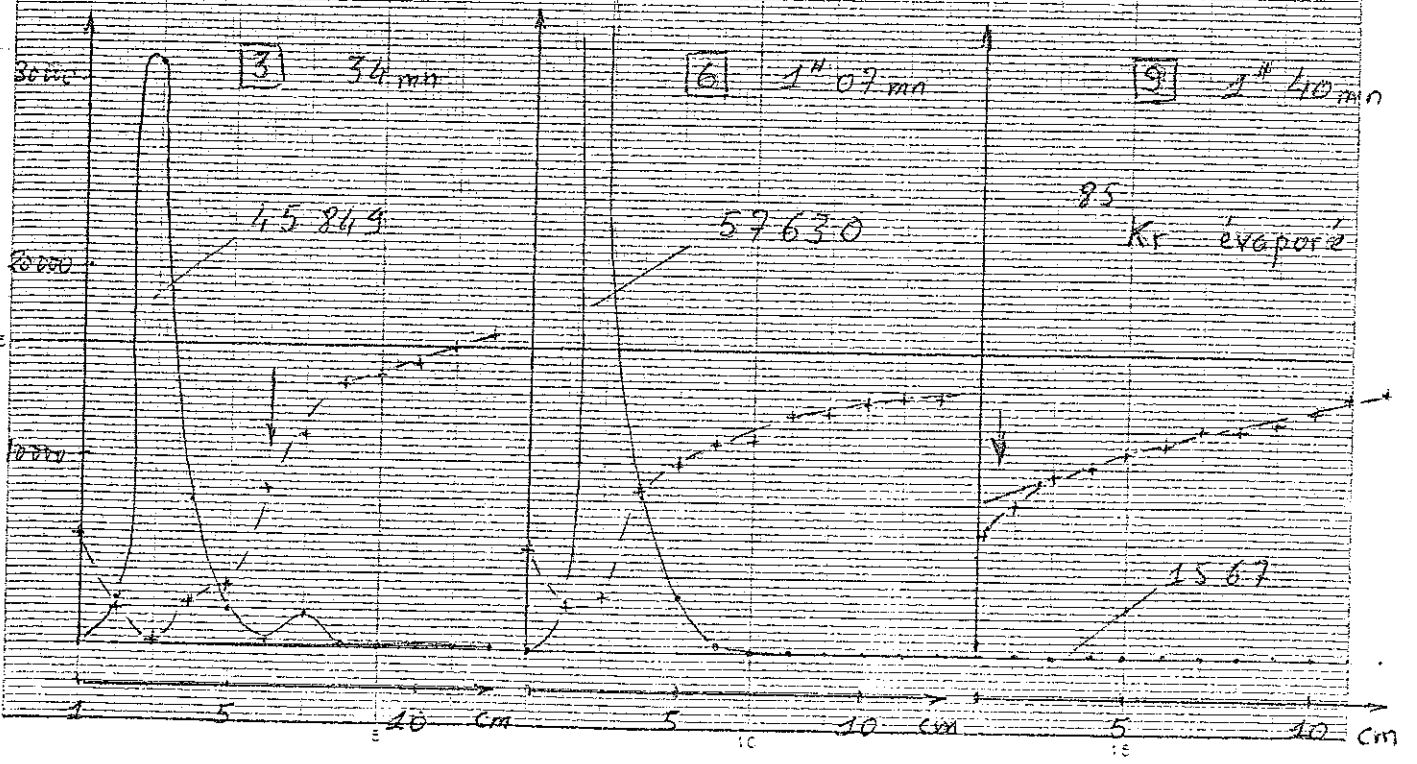
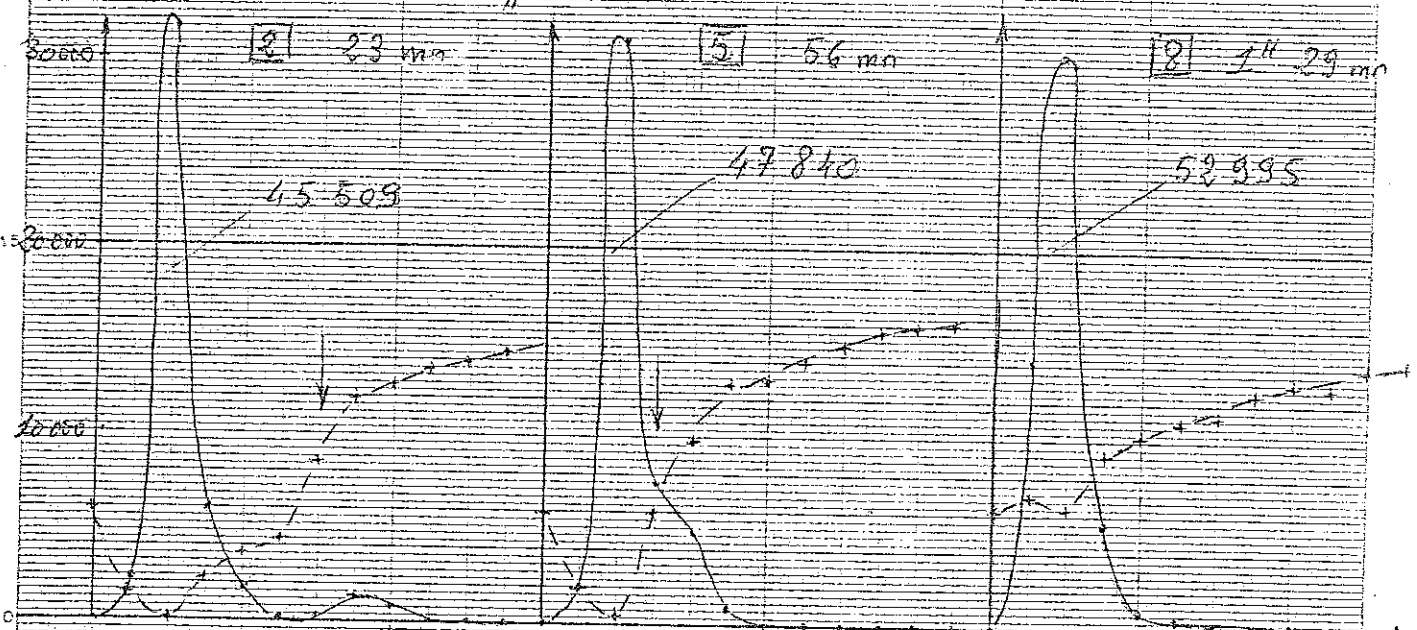


Fig.3: évolution du krypton résiduel.

Hchuli



Xe + Kr



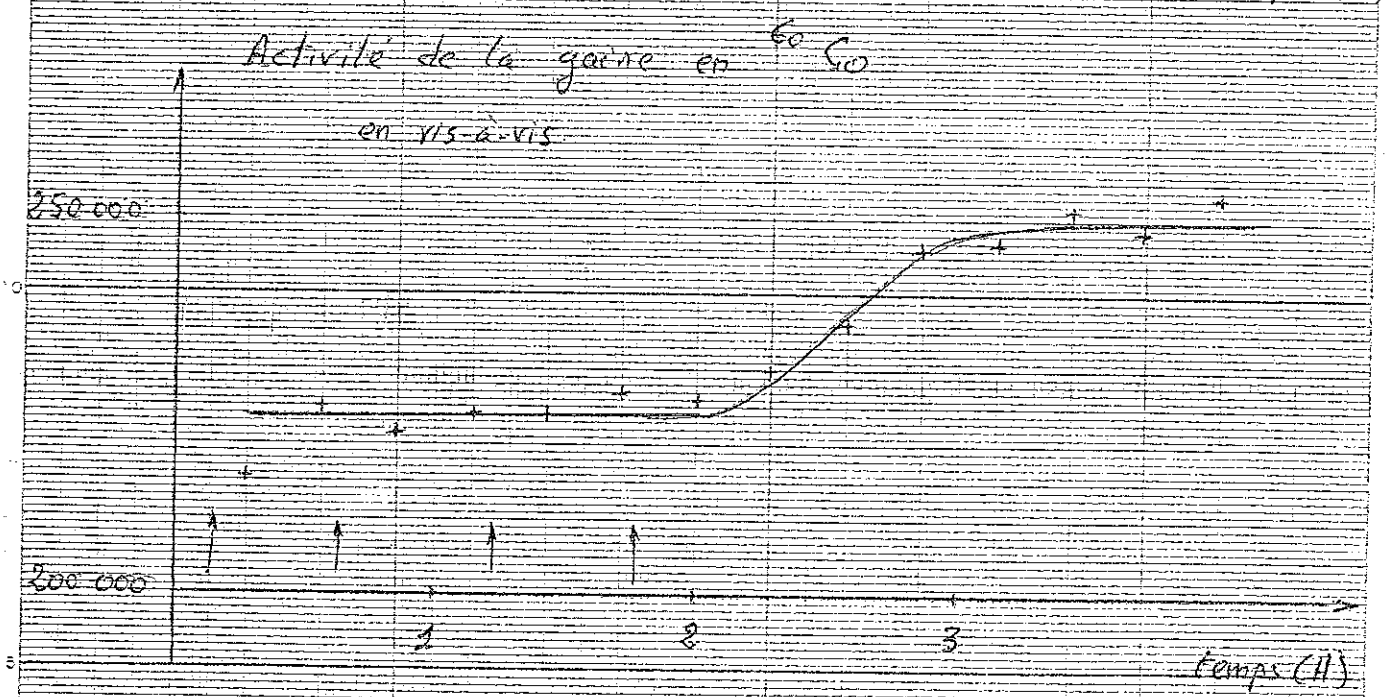
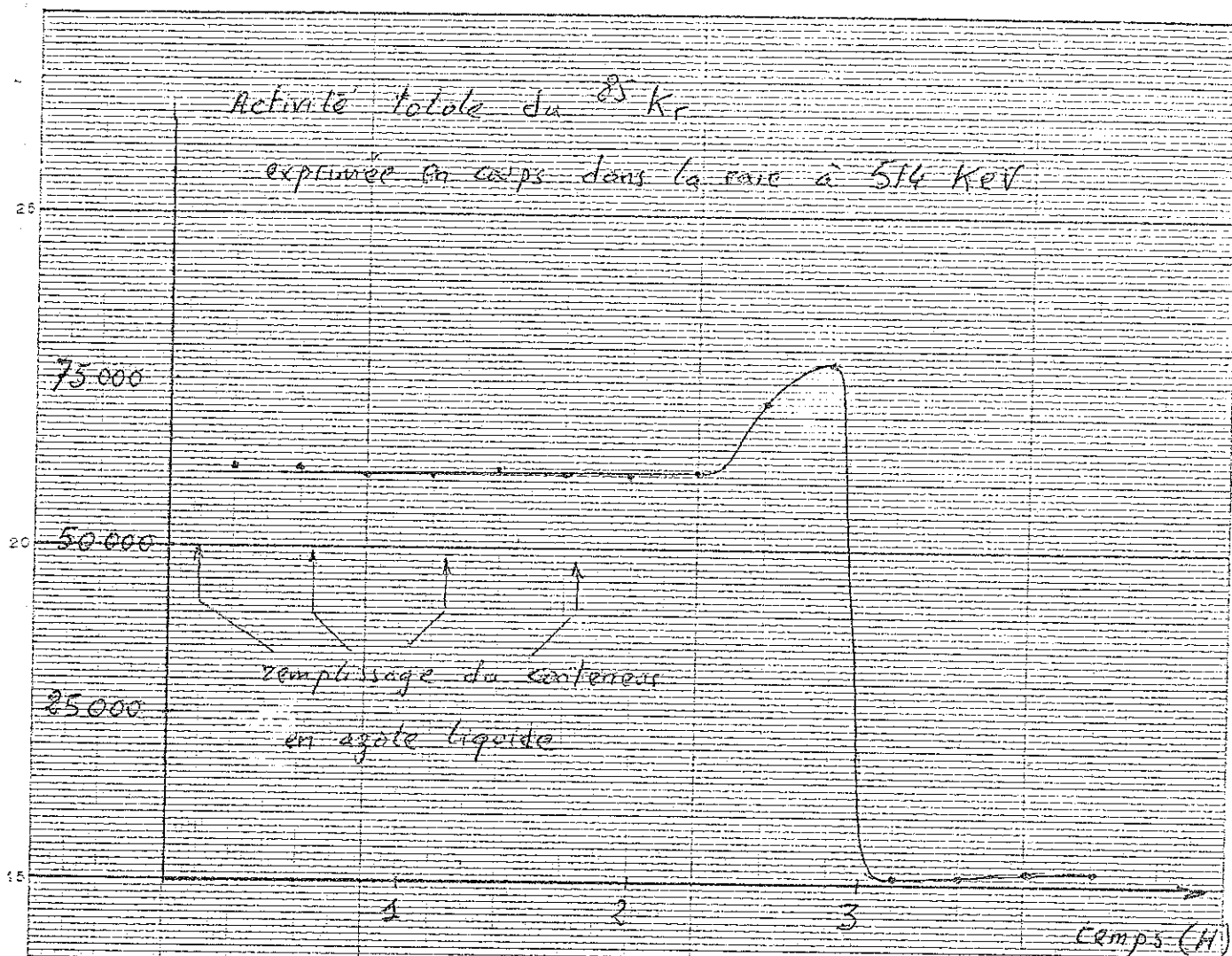


FIGURE 5