

DEPARTEMENT D'ETUDE DES
COMBUSTIBLES A BASE DE Pu
SERVICE DES LABORATOIRES
DE HAUTE ACTIVITE
Section des Combustibles
Irradiés

COMMUNICATION PRESENTEE A LA REUNION DES LABOS CHAUDS
DES 21 ET 22 Mai 1986 à BRASIMONE (Italie)

UTILISATION D'UNE MICROSONDE "CAMEBAX R" SUR
ECHANTILLONS ACTIFS

par C. SOLER X
M. BOIDRON

RESUME.

Depuis le début de l'année 1985 le LECA (Laboratoire d'Examens des Combustibles Actifs) s'est doté d'un appareil de microanalyse blindé (CAMEBAX R) afin d'effectuer des examens quantitatifs sur les éléments combustibles.

Après une année d'installation, de mise au point des dispositifs spécifiques au modèle blindé, et de caractérisation de l'appareil sur échantillons non irradiés, la mise en "actif" du CAMEBAX R a été effective fin Janvier 1986.

Actuellement, nous continuons la caractérisation de l'appareil, avec relevés des performances, sur des échantillons d'activité croissante.

Cette note décrit l'ensemble des travaux réalisés lors de l'installation dans le but d'une utilisation en "chaud" de l'appareil.

S O M M A I R E

1. INTRODUCTION.
2. DESCRIPTION SOMMAIRE DE L'APPAREIL.
 - 2.1. Le microscope à balayage (M.E.B.).
 - 2.2. L'analyse.
 - 2.3. Dispositifs spécifiques au modèle blindé.
3. PERFORMANCES DE L'APPAREIL.
4. AUTOMATISATION.
5. DESCRIPTION DE L'INSTALLATION.
 - 5.1. Implantation.
 - 5.2. Protection biologique.
6. OPERATION DE TRANSFERT.
7. MAINTENANCE DE LA SURETE RADIOACTIVE DE L'INSTALLATION.
 - 7.1. Risques d'irradiation.
 - 7.2. Dissémination radioactive.
 - 7.3. Criticité.
8. EXEMPLE D'EXAMEN SUR L'ECHANTILLON ACTIF.
MESURE DU RAPPORT Pu/M D'UN COMBUSTIBLE FONDU.
9. CONCLUSION.

1. INTRODUCTION.

Dans le cadre de l'étude des éléments combustibles irradiés, en particulier de ceux provenant de la filière rapide, le LECA (Laboratoire d'Examen des Combustibles Actifs) a été conduit à se munir d'un appareil, type microsonde blindée, spécialement conçu pour travailler sur échantillons actifs. Le "CAMEBAX R" (combiné d'appareils de microscopie électronique à balayage et d'analyse X de la Société CAMECA) est un appareil mixte automatisé, permettant d'effectuer des images de surface (e^- secondaires, e^- absorbés, R X) et de la microanalyse de rayons X fine et précise.

2. DESCRIPTION SOMMAIRE DE L'APPAREIL BLINDE. (Pl. 1 et 2)

Il est essentiellement constitué de trois grandes parties.

2.1. Le microscope à balayage (M.E.B.) avec les éléments suivants :

- la Colonne (canon, optique électronique, platine objet goniométrique partiellement blindée en dénal, groupe à vide).
- le Détecteur coudé pour électrons secondaires ce qui permet de soustraire par des blindages son photomultiplicateur aux rayons γ émis par l'échantillon.
- la Visualisation de l'introduction des échantillons par télévision.

2.2. L'analyse.

Elle est effectuée à l'aide de quatre spectromètres verticaux blindés, commandés par un moteur pas à pas ($1 \text{ pas} \rightarrow \Delta \sin \theta = 10^{-5}$), dont les caractéristiques sont mentionnées dans le tableau ci-dessous :

N° Spectro	Monochromoteurs	Compteur*	Domaine d'éléments
1	LIF, PET	H - P	de Z = 14 à Z = 92 et +
2	TAP, ODPB	B - P	Z = 5,6,7,9,10,11,12,13,14
3	LIF, PET, TAP ODPB	B - P	de Z = 5 à Z = 92 et +
4	ODPb (D=500)	B - P	Oxygène

* H-P = haute pression
B-P = basse pression

Les spectromètres sont protégés par des blindages constitués :

- de blocs d'alliage de Tungstène (Dénal) dans les enceintes,
- de blindages de plomb autour des compteurs,
- de feuilles de plomb à l'extérieur des enceintes.

Bien que leur cinématique soit identique à celle des spectromètres du CAMEBAX standard, la course des monochromateurs est réduite en raison de ces blindages.

Ces spectromètres permettent d'effectuer des analyses quantitatives sur des échantillons irradiés de 1 curie d'activité.

L'ensemble (sonde + M.E.B.) est relié à des pupitres et armoires de commande avec système de traitement de l'information.

L'automatisation est importante surtout en microanalyse.

2.3. Dispositifs spécifiques au modèle blindé. (Pl. 3)

2.3.1. Dispositif d'introduction des échantillons.

L'introduction des échantillons dans la chambre du microscope s'effectue manuellement par un dispositif type sas d'introduction, solidaire de l'appareil, dont le tiroir est à l'intérieur de la boîte à gants sas CAMEBAX (rep. 11, schéma 1). Il est muni d'une boîte de commande avec synoptique d'introduction et sécurités.

L'opération d'introduction fait intervenir un système de télévision en circuit fermé permettant d'observer l'acheminement de l'échantillon lors de son positionnement sur la platine objet du CAMEBAX.

2.3.2. Télécommandes de la colonne électronique.

Les réglages manuels de la colonne électronique du CAMEBAX standard sont remplacés, sur la version CAMEBAX R, par des servomoteurs qui permettent la commande à distance (centrage des diaphragmes, du Wehnelt, de l'objectif à miroir, etc..).

2.3.3. Dispositif de visée microscopique.

Le CAMEBAX R étant dans une enceinte blindée, il n'est pas possible d'observer l'échantillon à la loupe binoculaire. L'observation s'effectue également par un système de télévision en circuit fermé. Le grandissement sur l'écran est d'environ 800.

3. PERFORMANCES DE L'APPAREIL.

Partie M.E.B.

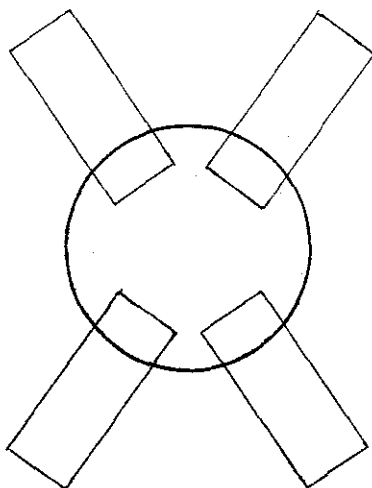
- résolution meilleure que 10 nm,
- grandissement de 100 à 80.000,
- plage balayée : 20 mm x 50 mm.

Partie ANALYSE.

Après l'analyse qualitative on peut, à partir de la configuration suivante,

Spectro 3 ⋮ PET
 ⋮ LIF

Spectro 2 ⋮ ODPb
 ⋮ TAP
 ⋮ PET
 ⋮ LIF



Spectro 4 ODPB pour O₂

Spectro 1 ⋮ ODPb
 ⋮ TAP

effectuer les analyses quantitatives de tout un domaine déterminé, en calant en début d'analyse, chaque spectromètre sur un monochromateur différent. L'ensemble des constituants de la zone à analyser est ainsi obtenu très rapidement.

REMARQUE :

Un test de détectabilité sous rayonnement, ou sensibilité de détection sur étalons CAMECA, a été effectué en présence d'une source radioactive, non contaminante, de césium 137 de 0,7 Ci (source SPR). Les concentrations minimales sont à comparer avec celles mentionnées par CAMECA (Tableau 1).

4. AUTOMATISATION. (schéma 2)

Les spectromètres et la platine objet sont automatisés indifféremment au moyen du système Microbeam par le microprocesseur central ou par le calculateur PDP 11.

Celui-ci est équipé d'une version modifiée du programme MBXCOR qui tient compte des modifications des spectromètres et du mode d'extraction de l'objet par le sas latéral.

5. DESCRIPTION DE L'INSTALLATION.

5.1. Implantation.

L'appareil a été implanté au sous-sol du LECA dans un local qui répondait aux caractéristiques suivantes :


- champ magnétique < 10^{-3} gauss
- vibration max. < 5.10^{-4} g

5.2. Protection biologique.

Elle concerne uniquement la protection biologique des opérateurs. La protection de l'appareil est assurée par construction.

Elle comprend : (schéma 1)

- trois murs n° 1, 2, 3 en parpaings de béton (hauteur 2 m, largeur 2 m, épaisseur 0,5 m).

Le mur n° 1 possède un passage compartiment métallisation (rep. 6)  boîte à gants sas CAMEBAX R (rep. 11).

Le mur n° 2 comprend un passage d'entrée-sortie échantillons et déchets.

Afin d'accéder au CAMEBAX, la nouvelle protection n° 3 dispose, outre les blocs de béton, de deux portes blindées coulissantes d'épaisseur 0,05 m de plomb chacune (rep. 9). Toutes les servitudes du CAMEBAX R se font par ces portes (changement de filament, accès à la platine, aux pompes primaires, etc...).

- Deux boucliers mixtes fixes n° 4 et 5 (hauteur 1,8 m, largeur 2 m, matériaux : 0,5 m de béton et 0,1 m de plomb).

Ces boucliers comprennent des hublots et des pinces à distances.

Nota : ces boucliers possèdent des dispositifs à coussin d'air leur permettant un éventuel déplacement en cas de gros incident.

- Une boîte à gants à double compartiment avec :
 - . un pulvérisateur cathodique (rep. 8),
 - . un bac à ultra-sons,
 - . une aspiration assurant une dépression de quelques mm d'eau,
 - . des obturateurs étanches et divers accessoires.
- Un toit participant à la protection supérieure des vestiaires (0,05 m de plomb).

Remarque :

Un sas de confinement (rep. 14 - schéma 1) a été réalisé afin de limiter l'éventuelle dissémination radioactive qui pourrait être provoquée par le déchargement ou le chargement des échantillons dans la boîte à gants.

6. OPERATION DE TRANSFERT.

Les échantillons, préparés en cellule de haute activité, sont introduits dans un château de transfert (blindé de 10 cm de plomb) par l'intermédiaire d'une sorbonne blindée, de faible contamination. Le château est ensuite véhiculé jusqu'au sas de confinement.

7. MAINTENANCE DE LA SURETE DE L'INSTALLATION.

Du point de vue sûreté les risques radioactifs inhérents au poste de travail du CAMEBAX R sont pris en compte comme suit.

7.1. Risques d'irradiation.

Deux détecteurs contrôlent l'activité à l'intérieur et à l'extérieur de l'enceinte de l'appareil. Le seuil de déclenchement pour l'activité extérieure est de 0,25 mrad/h. L'intensité de rayonnement dans les boîtes à gants est mesurée en permanence par un télédebimètre du type IF 103.

7.2. Dissémination radioactive.

Les dépressions dans les boîtes à gants sont de 10 à 15 mm d'eau.

Des opérations de contrôle de la contamination sont effectuées dans les zones les plus susceptibles d'être contaminées. (sas de confinement rep. 14 par exemple).

7.3. Criticité.

La quantité de matière fissile admissible est de 350 g.

8. EXEMPLE D'EXAMEN SUR ECHANTILLON ACTIF. MESURE DU RAPPORT Pu/M D'UN COMBUSTIBLE FONDU.

Un examen au CAMEBAX a été réalisé sur un combustible ayant subi une fusion à coeur, afin d'évaluer l'évolution du rapport Pu/M.

En prenant comme référence le bord extérieur du combustible de rapport Pu/M initial de 14,85 %, une microanalyse a été effectuée suivant un diamètre sur une coupe radiale d'un échantillon.

La courbe 1 montre les résultats de l'analyse qualitative. Celle-ci est réalisée en calant un monochromateur sur la raie caractéristique de l'élément considéré.

Les courbes 2 et 3 donnent les résultats de l'analyse quantitative effectuée par comptage, tous les 50 μ m, des éléments caractéristiques (U, Pu). Les valeurs sont obtenues par comparaison avec une référence prise au bord du combustible et après corrections des effets du numéro atomique de l'absorption et de la fluorescence (correction ZAF).

Ces courbes apportent les principaux renseignements suivants :

- la teneur en plutonium au bord du combustible est très perturbée, l'hétérogénéité à cet endroit est importante.
- la dépression du plutonium observée à 1500 μ m du bord du combustible est de 1 %. Elle est corrélée à une zone noire observée en autoradiographie alpha.

Le rapport est donné avec une précision relative de 0,3 %.

9. CONCLUSION.

Le CAMEBAX R blindé installé au LECA est un appareil modulable mixte (sonde + M.E.B.) spécialement conçu pour effectuer des analyses quantitatives de rayons X sur échantillons radioactifs.

Muni de ces quatre spectromètres de hautes performances, il peut réaliser des analyses précises simultanément sur un groupe d'éléments, sans changement de plage d'analyse et de monocristal disperser.

Cet appareil, ainsi équipé, d'une grande puissance analytique, apportera des renseignements précieux quant à la compréhension des phénomènes métallurgiques et physico-chimiques associés à l'irradiation des éléments combustibles.

TABLEAU 1.

SENSIBILITES DE DETECTION

Monochromateur Tension courant	Elément	P (c/s)	F _x +F _r (c/s)	* ≤ (T = 100s)	≤ mesure de CAMECA
LIF · 30 kV · 100 nA	Ge K _α	75726	524	0,017 %	0,017 %
	Fe K _β	92909	367	0,012 %	0,009 %
	Ti K _α	48404	147	0,014 %	0,011 %
PET · 20 kV · 100 nA	Ti K _α	83701	273	0,011 %	0,007 %
	Ag L _α	20435	179	0,037 %	0,024 %
TAP · 20 kV · 100 nA	Al k _α	125220	371	0,009 %	0,005 %
	Mg k _α	127570	335	0,008 %	0,005 %

$$* \leq = \frac{4}{P \sqrt{T}} \sqrt{2(F_x + F_r)}$$

avec \leq = concentration minimale détectable avec une précision relative meilleure que $\pm 50\%$ dans un intervalle de confiance de 2σ (95 %).

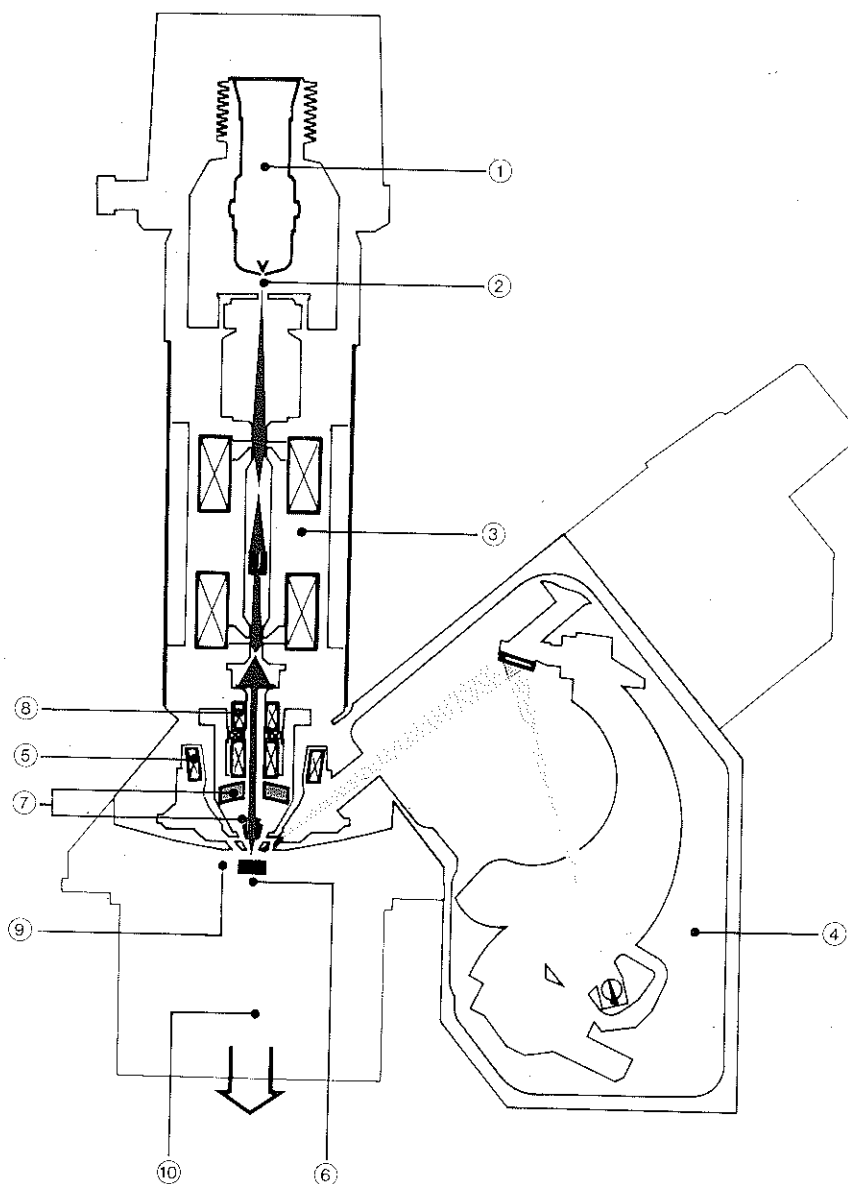
P = Taux de comptage (c/s) du pic caractéristique

F_x = Taux de comptage du bruit de fond dû aux Rayons X

F_r = Taux de comptage du bruit de fond dû à la radioactivité.

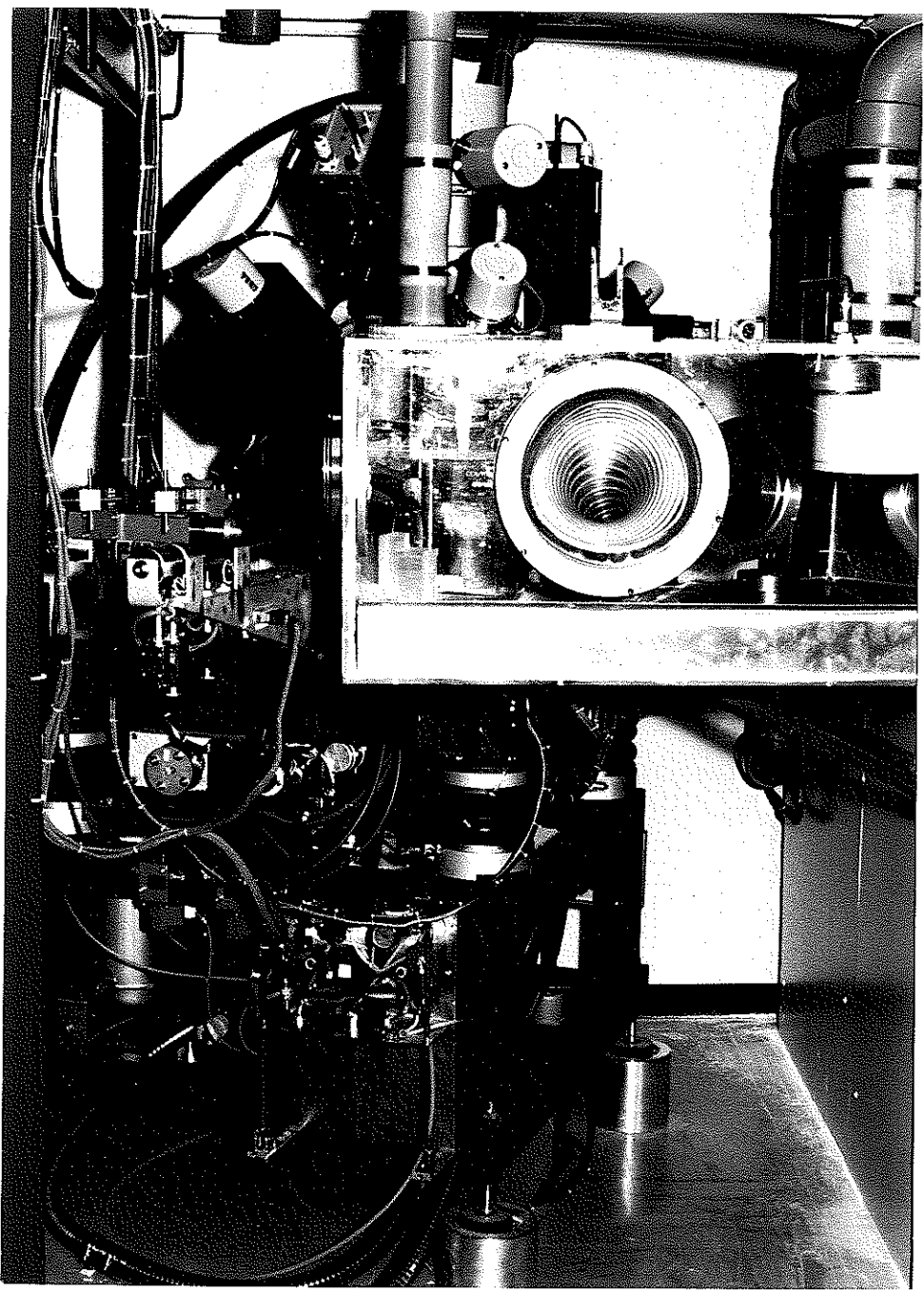
CAMEBAX

SCHEMA DE PRINCIPE



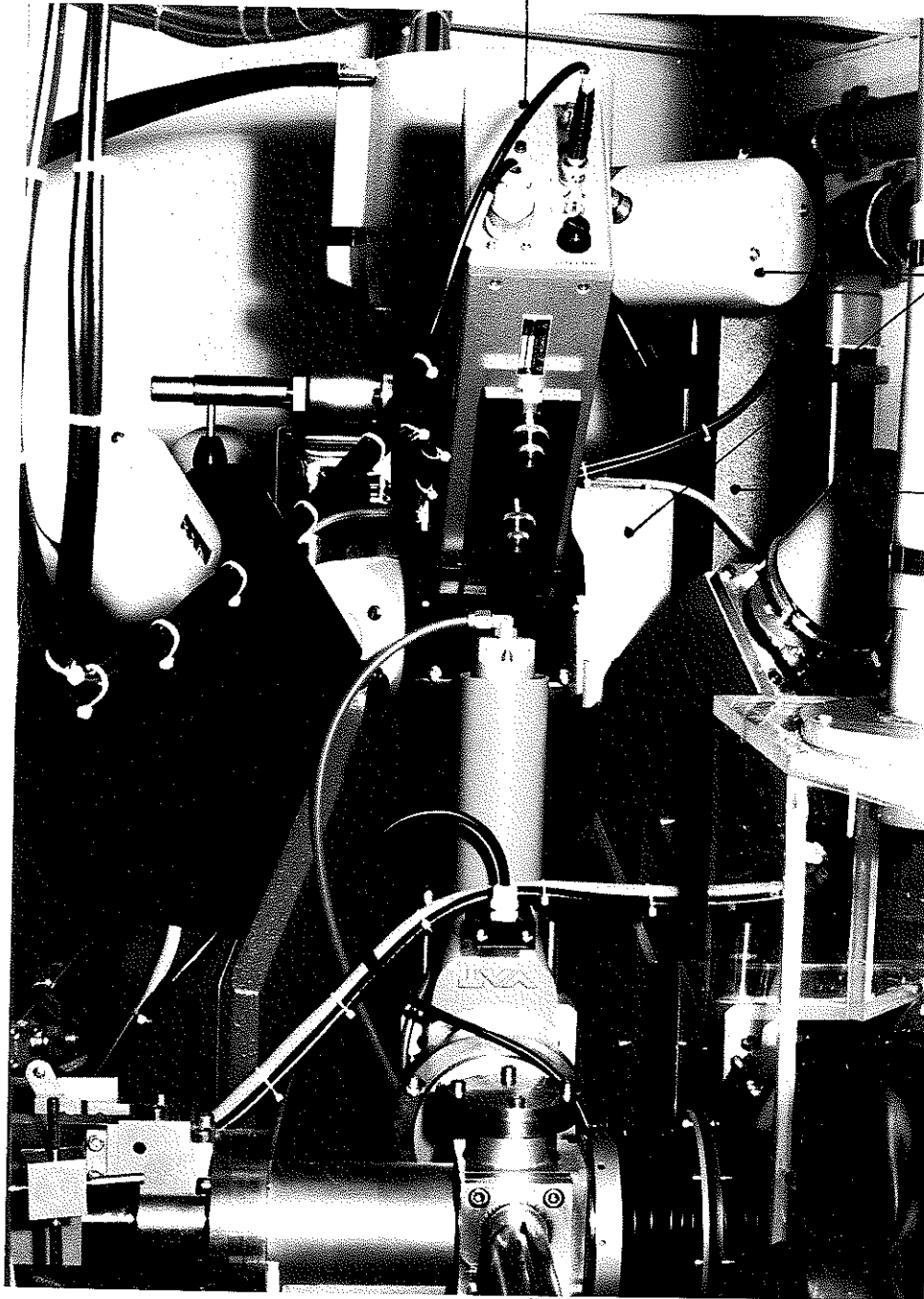
- ① Canon à electrons
- ② Wehnelt
- ③ Lentilles magnétiques
- ④ Spectromètre dispersif en λ
- ⑤ Lentille focalisatrice
- ⑥ ⑨ chambre objet
- ⑦ Système optique photonique
- ⑧ Bobines de balayage
- ⑩ Pompage

VUE GENERALE DU CAMEBAX R AU L.E.C.A.



DISPOSITIFS SPECIFIQUES AU CAMEBAX R

Camera Introduction
échantillons

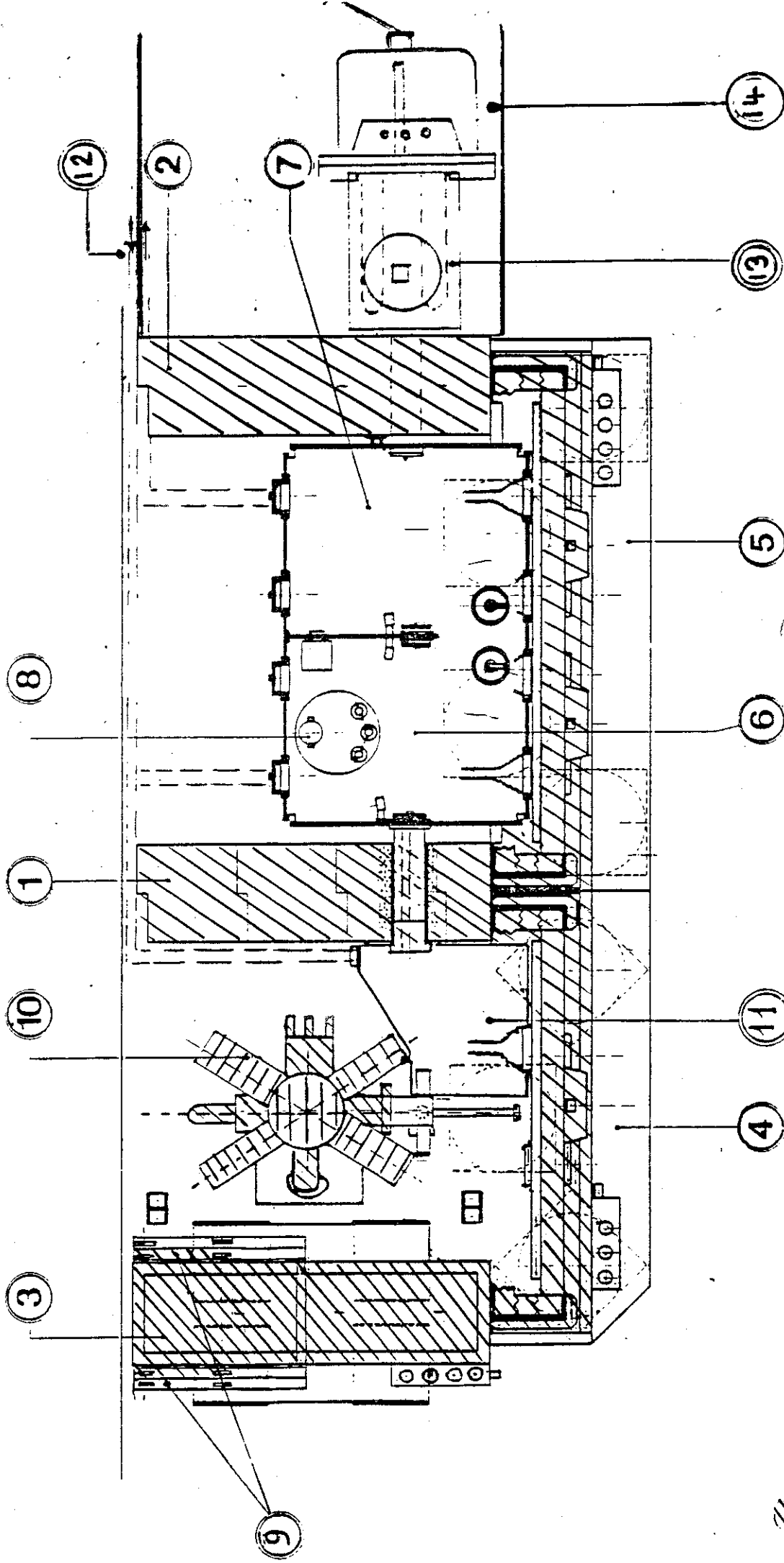


Servomoteurs

Camera de
visée optique

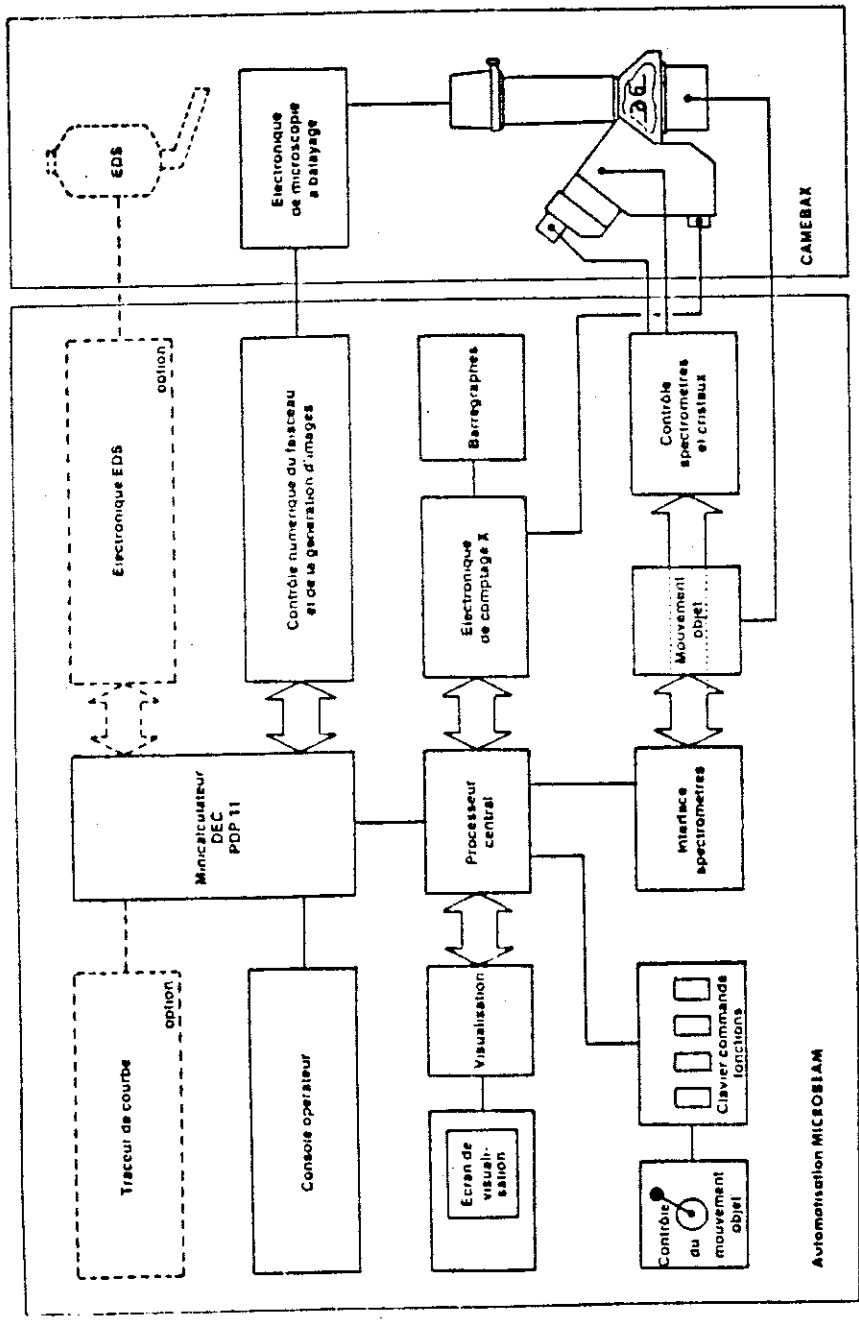
↑
Dispositif d'introduction
des échantillons

PROTECTION DU MICROANALYSEUR "CAMEBAX R" SCHEMA N°1



- (1) PROTECTION DE SEPARATION
- (2) PROTECTION AVEC DISPOSITIF ENTREE-SORTIE ECHANTILLONS
- (3) PROTECTION AVEC PORTES D'ACCES AU CAMEBAX
- (4) PROTECTIONS AVEC HUBLOTS ET PINCES
- (5) COMPARTIMENTS DE BOITE A GANTS
- (6) PULVERISATION CATHODIQUE

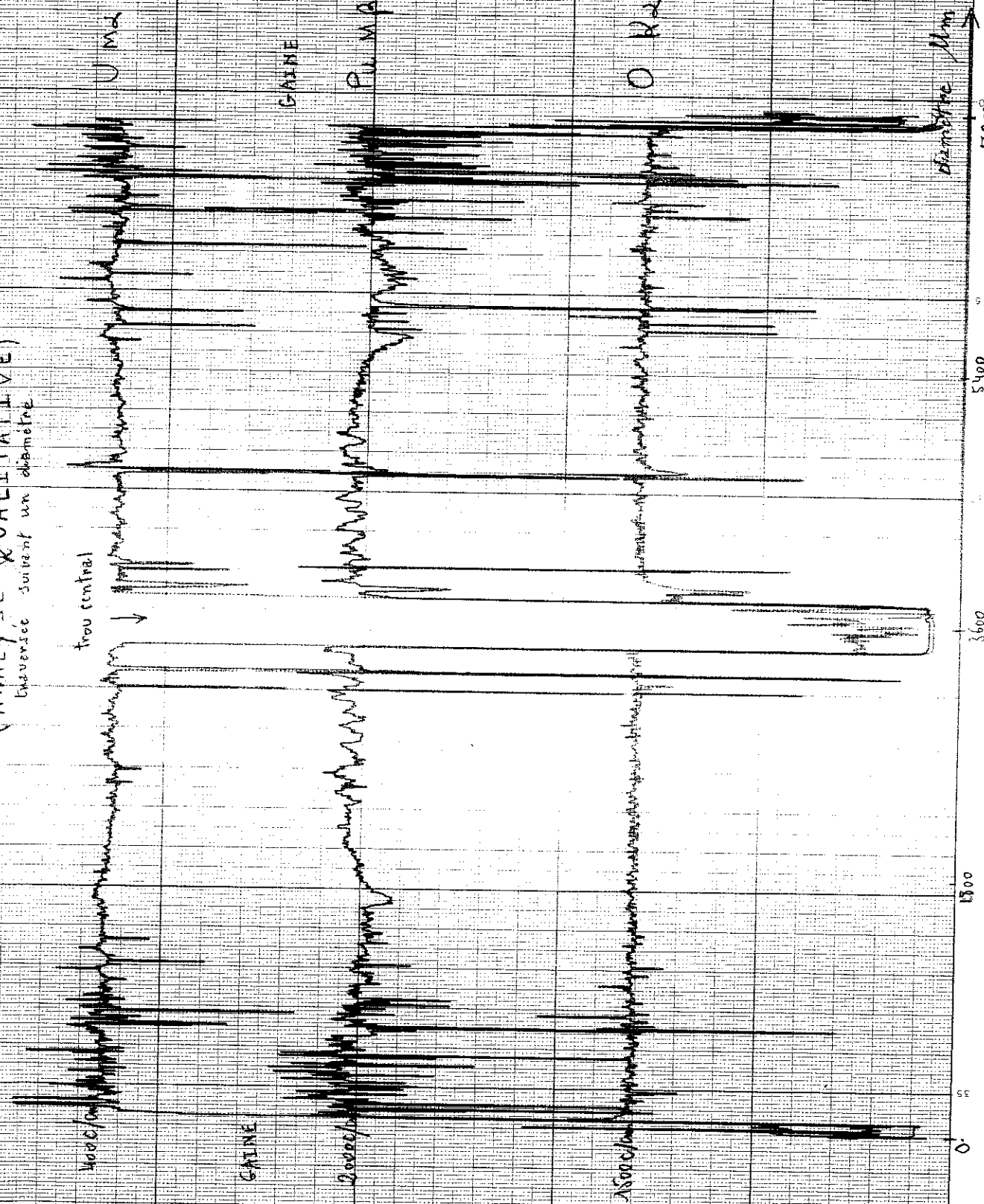
- (7) PORTES COULISSANTES BLINDÉES
- (8) CAMEBAX R
- (9) BOITE A GANTS SAS CAMEBAX R
- (10) VENTILATION
- (11) CHATEAU ET CHARIOT DE TRANSFERT
- (12) SAS VENTILE DE CONFINEMENT



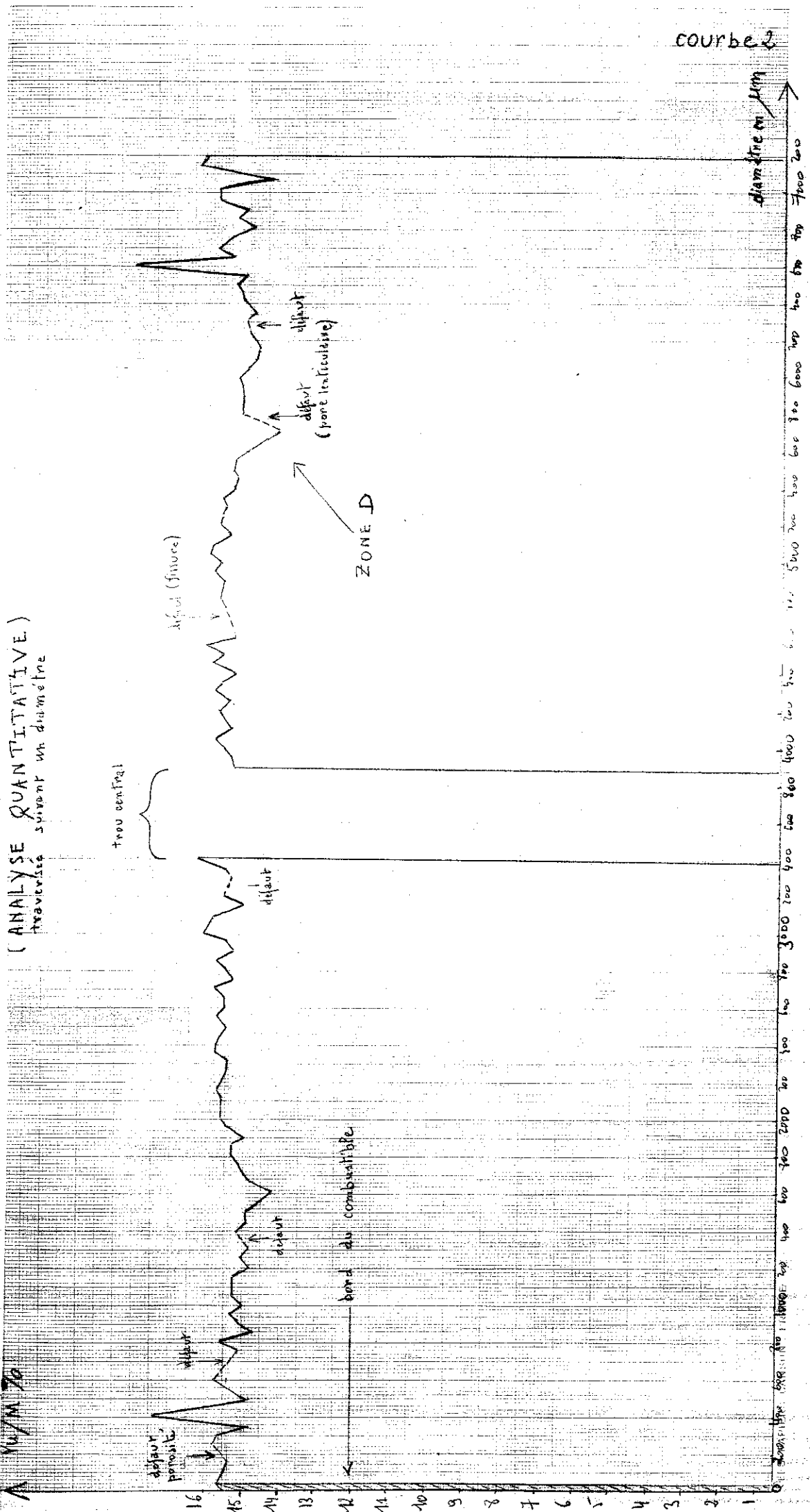
(ANALYSE QUALITATIVE)
traversee suivent un diametre

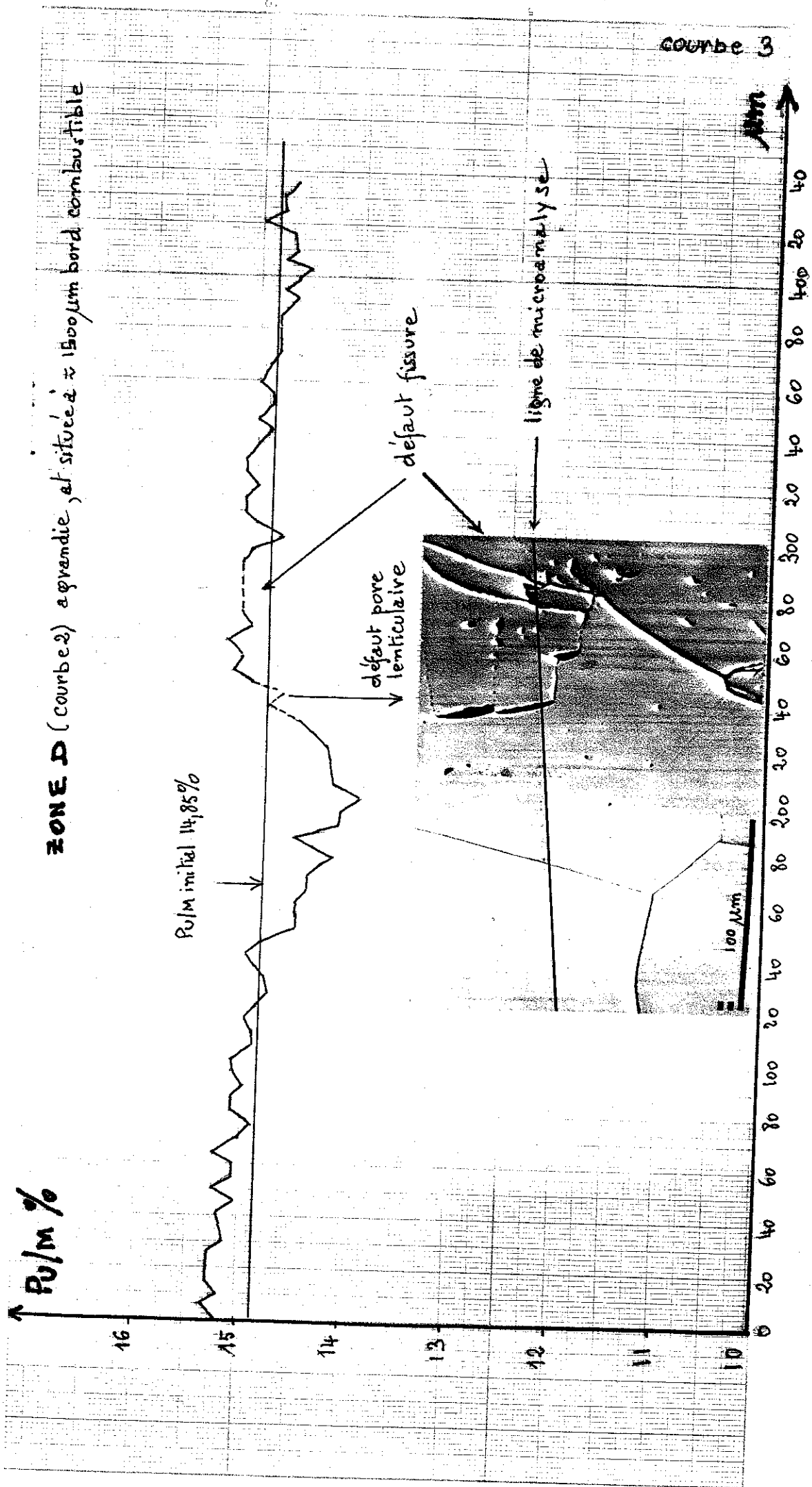
COURSE 1

trou central



(ANALYSE QUANTITATIVE)
traversee suivant un diametre





ZONE D (courbes) agrandie, et située à 1500 μm bord combustible

Pu/m initial 14,85%

défaut fissure

défaut pore lenticulaire

ligne de microanalyse

100 μm

courbe 3

mm