

2.5.

**ETUDE DE LA LOCALISATION DES PRODUITS DE FISSION DANS UNE AIGUILLE.
SUIVI DU RELACHEMENT PAR GAMMAMETRIE.**

MICHEL BOIDRON, FRANCOIS BOUSSARD, JEAN NOIROT.

Résumé: Pour étudier les limites de relâchement des produits de fission et de matière fissile, des essais de trempage en eau de tronçons d'aiguilles rapides irradiées ont été effectués avec suivi par gammamétrie de l'eau et des tronçons. Ces essais ont apporté des résultats en ce qui concerne la mobilité des produits de fission, leur localisation et la nature des composés formés.

**Communication à la réunion du groupe de travail des
communautés Européennes sur les Laboratoires Chauds.**

24 25 JUIN 1992 à SUZE LA ROUSSE

**DIRECTION DES REACTEURS NUCLEAIRES
CENTRE de CADARACHE
13108 - Saint Paul lez Durance Cedex France**

 42.25.48.81

1646copie: : 42.25.48.78

telex: CEACA 440.678F

PLAN

1.INTRODUCTION	3
2. REALISATION DES EXPERIENCES.....	3
2.1 APPAREILLAGE.....	3
2.1 REALISATION DES ESSAIS.....	4
3. INTERET DES ESSAIS.....	4
3.1 CINETIQUE DE RELACHEMENT	4
3.2 LOCALISATION DU CESIUM RELACHE.....	5
3.3 NATURE DES COMPOSES.....	6
4. CONCLUSION.....	6
REFERENCES.....	8

1. INTRODUCTION

Les essais de trempage en eau d'éléments combustibles irradiés ont été développés dans le cadre des études de stockage sous eau des assemblages des réacteurs à neutrons rapides. Parallèlement aux essais de lavage d'assemblages et d'aiguilles, des tests enveloppes ont été réalisés sur des tronçons d'aiguilles pour étudier les limites de relâchement des produits de fissions et de matière fissile.

La facilité de mise en oeuvre et le fait qu'un des principaux produits de fission relâchés est le césium ont conduit à les utiliser pour étudier le comportement et la nature des composés de produits de fission dans l'élément combustible neutrons rapides. Nous nous sommes plus particulièrement intéressés aux composés du césium du fait de leur abondance relative parmi les composés de produits de fission et de la radioactivité gamma de ses isotopes 137 et 134 qui permet de les suivre en spectrogammamétrie. La méthode repose sur l'hypothèse, vérifiée a posteriori, de la solubilité dans l'eau des composés de césium. Dans ces conditions, le césium situé dans le combustible ou dans des endroits inaccessibles à l'eau ne sera pas déplacé lors des trempages et impliquera une valeur limite au relâchement en eau. Ces résultats peuvent être comparés aux mesures de concentration du césium intragranulaire réalisées à la microsonde et apportent donc des informations sur les composés de césium mobiles et en particulier sur ceux localisés dans le joint de composés situé entre l'oxyde et la gaine, ce dernier étant un élément clé pour le transfert thermique et étant impliqué dans d'autres phénomènes comme la corrosion des gaines.

Après la présentation des éléments utilisés dans cette technique d'immersion, désignée ci-après sous le nom de trempage, nous présentons les différents apports de ces essais dans les domaines de la mobilité des produits de fission, de leur localisation et de la nature des composés formés.

2. REALISATION DES EXPERIENCES

Nous nous limiterons ici au suivi du relâchement des produits de fission par gammamétrie, sachant que les éléments les plus représentés sont le césium et que le combustible peut être suivi par le ruthénium, des analyses chimiques étant ultérieurement réalisés dans des laboratoires spécialisés

2.1 APPAREILLAGE

Le système est principalement constitué d'une chaîne de mesures de spectrogammamétrie, l'échantillon étant positionné dans un conteneur étanche posé sur un système de déplacement.

L'ensemble des essais est réalisé dans une cellule du Laboratoire d'Examens des Combustibles Actifs, équipée d'un collimateur et d'une diode spécifique. Les résultats de gammamétrie étant traités par un analyseur utilisé aussi pour les

gammamétries sur aiguilles entières réalisées dans une autre cellule permettant aussi les observations radiales.

La chaîne d'acquisition est classiquement composée d'un détecteur au germanium, d'un codeur réalisant la conversion analogique numérique des impulsions et de l'analyseur IN 1200 (Intertechnique) permettant l'acquisition le traitement et l'archivage des données. Le système de collimation est réalisé dans un bouchon de la cellule avec une fente réglable entre 0 et 5 mm.

Le système de déplacement est constitué d'une table avec deux moteurs pas à pas permettant des déplacements horizontaux et verticaux avec des pas minimums de 10 μm (photo3 figure 1).

Les essais sont effectués dans des conteneurs étanches, sous gaz neutre, l'échantillon étant immergé dans de l'eau déminéralisée, le tout étant chauffé entre 25 et 80°C (photo 1 et 2 figure 1). Les conteneurs permettent la mise hors d'eau des tronçons pour la réalisation des mesures de gammamétrie.

2.1 REALISATION DES ESSAIS

Dans un trempage en eau le tronçon d'aiguille (d'une longueur de 20 mm) est immergé dans 70 cm³ d'eau à 80° C durant des périodes fixées qui s'étendent de 2 à 12 heures, avec un cumul global de 24 heures, largement supérieur au temps nécessaire pour assurer le relarguage total des composés de césium accessibles.

A l'issue de chaque trempage, l'échantillon est mis à sécher, et les gammamétries sont effectuées (axiales pour l'eau, axiales et radiales pour les tronçons), la spectrométrie étant dite axiale lorsque le défilement s'effectue le long d'une génératrice du cylindre que représente le tronçon et radiale quand elle est réalisée suivant un diamètre d'une des extrémités du tronçon. Le tronçon est ensuite pesé et une prise de vue est réalisée au périscope. Le tronçon est alors prêt pour un nouveau trempage éventuel (figure 2).

3. INTERET DES ESSAIS

3.1 CINETIQUE DE RELACHEMENT

L'évolution axiale de la répartition des radioéléments dans chaque échantillon au cours des trempages successifs est mise en évidence par les gammamétries réalisées sur le ruthénium 106, les césium 137 et 134 et l'antimoine 125 (figures 3 et 4). Qualitativement, les évolutions axiales montrent dans tous les cas que seuls les isotopes du césium quittent nettement le tronçon. L'élément traceur habituel du combustible (Ru106) ne semble pas avoir évolué au cours des multiples trempages. Le mode d'évacuation des isotopes du césium est à noter: on n'observe pas un appauvrissement initial des extrémités suivi par celui des zones médianes. La répartition initiale, en général assez homogène, est abaissée globalement de la même valeur.

Les résultats quantitatifs de ces trempages, obtenus en intégrant les répartitions axiales, confirment les observations précédentes. Les éléments traceurs du combustible (Ru106 en particulier) présentent un relâchement statistiquement nul à l'issue des multiples trempages (0+-0.8%), quels que soient les échantillons considérés. Le Sb125 ne bouge pas ou peu.

Dans tous les échantillons d'aiguilles RNR à forts taux de combustion sur lesquels des essais de ce type ont été réalisés, les évolutions du taux de relâchement de césium en fonction de la durée de trempage suivent une loi du même type avec une même vitesse de sortie des composés : les courbes (figure 5) qui modélisent le relâchement en fonction du temps utilisent toutes une même formule élaborée à partir d'une hypothèse initiale de dissolution rapide des composés de césium dans l'eau mais avec une sortie lente du tronçon.

Les taux de relâchement maximum en césium varient suivant les échantillons (de 30 à 80%). Ces taux ont été utilisés pour calculer la quantité de césium restant dans le tronçon à partir de la quantité initialement présente calculée après quantification des spectres axiaux de répartition des césium sur l'aiguille entière. Ces quantités absolues de césium restant dans le combustible ont pu, pour certains échantillons être comparés aux mesures directes de la concentration de césium dans le combustible effectuées à la microsonde sur des échantillons adjacents. Dans l'exemple 1, ces quantités sont identiques (de l'ordre de 3.5 mgCs/g U_{Pu}O₂).

Enfin, il a été observé que les relâchements de l'isotope 137 du césium était parfaitement corrélés avec celui de l'isotope 134 (coefficient de corrélation égal à 0,992), mais que la pente est légèrement supérieure à un avec une ordonnée à l'origine non nulle (figure 7).

Il est possible d'expliquer ce comportement si l'on considère que les composés de césium 134 sont plus accessibles à l'eau que ceux de 137 mais, dans la mesure où le phénomène est linéaire, il faut alors que la quantité de césium 134 libéré en plus dans l'eau par rapport au césium 137 soit proportionnelle à la quantité totale de césium 134 libéré. Autrement dit, le césium 134 présente une fraction soluble dans l'eau constante et plus grande que celle du césium 137.

Une conséquence est qu'il est probable que les composés de césium 134 ne soient pas les mêmes ou en proportions identiques à ceux du césium 137 puisqu'ils ne présentent pas la même solubilité à l'eau. Considérant l'origine différente de ces deux isotopes et partant, le moment différent auquel ils se retrouvent finalement dans le Joint Oxyde-Gaine (JOG), cette conclusion n'est pas trop surprenante. Que l'ordonnée à l'origine soit positive va également dans ce sens car un relâchement en Cs134 existe quand celui du Cs137 est négligeable. S'agissant de composés de césium solubles, ce sont les anions avec lesquels ils étaient associés en pile qui les différencient.

3.2 LOCALISATION DU CESIUM RELACHE

Des gammamétries radiales ont été réalisées sur les échantillons. En raison de la relative épaisseur du collimateur (0.5 mm), et de l'épaisseur de l'échantillon (20 mm), il n'a pas été possible de tirer des résultats quantitatifs de ce type de mesures.

Néanmoins, l'examen des profils obtenus met en évidence la localisation radiale des radioéléments et quels endroits sont intéressés par les dépôts lors des trempages successifs.

On observe cependant assez nettement sur la figure 6 que le césium, c'est à dire les isotopes 134 et 137, est majoritairement situé à l'extérieur de la pastille (entre le combustible représenté par le ruthénium et la gaine identifiée par le manganèse). Cette description est cohérente avec la définition du JOG, joint entre combustible et gaine, exempt de matière fissile. Après trempage, on constate que le césium en extérieur de pastille subit les dépôts majoritaires. Ces éléments qualitatifs sont cohérents avec la représentation actuelle des phénomènes. On a en effet bien affaire à deux types de stockage du césium dans l'élément combustible: l'un est dans le joint à l'extérieur de la pastille combustible ou en passe de l'être via les fissures et manifestement accessible à l'eau, l'autre est encore dans le combustible et inaccessible à l'eau. En pile, seul le premier est donc susceptible de mouvements axiaux.

3.3 NATURE DES COMPOSES

Pour connaître le rapport entre le poids de césium évacué du tronçon lors des trempages et la perte de poids totale, le poids du tronçon avant et après a été mesuré et la différence a été comparée au poids de césium relâché. Par ce biais, il a été possible d'évaluer quels composés présents sont compatibles avec ces mesures. Les points sont alignés sur une droite de pente 1,53 ($2\sigma = 0,14$) et qui passe par 0 à l'origine.

Connaître la valeur de la pente, soit 1,53, permet d'avoir une idée sur les composés les plus probables mis en solution en comparant, pour chacun d'entre eux, le rapport poids de césium/poids de composés. Des différents composés susceptibles d'être considérés (uranates, chromates, molybdates...), il est remarquable de constater que c'est le molybdate de césium, avec un rapport de 1,58, qui est le plus proche de la valeur mesurée et est situé dans l'intervalle de confiance ($1,53 \pm 0,14$) à 95% de confiance. Remarquable, car c'est justement le composé que la thermodynamique et les observations à la microsonde donnent comme le plus probable. L'absence d'urate de césium qui ne peut s'envisager sans de grandes quantités d'éléments de faible rapport est lui aussi en accord avec les observations à la microsonde.

4. CONCLUSION

Cette méthode expérimentale est intéressante par sa mise en oeuvre aisée pour une technique réalisée en cellule blindée et s'est révélée, à l'usage, particulièrement féconde.

Dans les combustibles U₂PuO₂ irradiés, ces expériences de trempage en eau ont mis en évidence que:

-la partie du césium soluble dans l'eau correspond, aux erreurs de mesure près, à tout le césium qui est sorti du combustible, c'est à dire principalement celui

qui est présent dans le JOG. Les composés emmenés dans l'eau ne contiennent aucun radioélément traceur du combustible.

-les isotopes de césium 134 et 137 présentent de légères différences pour les composés chimiques qu'ils forment, pour des raisons qui tiennent, semble-t-il, à leurs origines respectives.

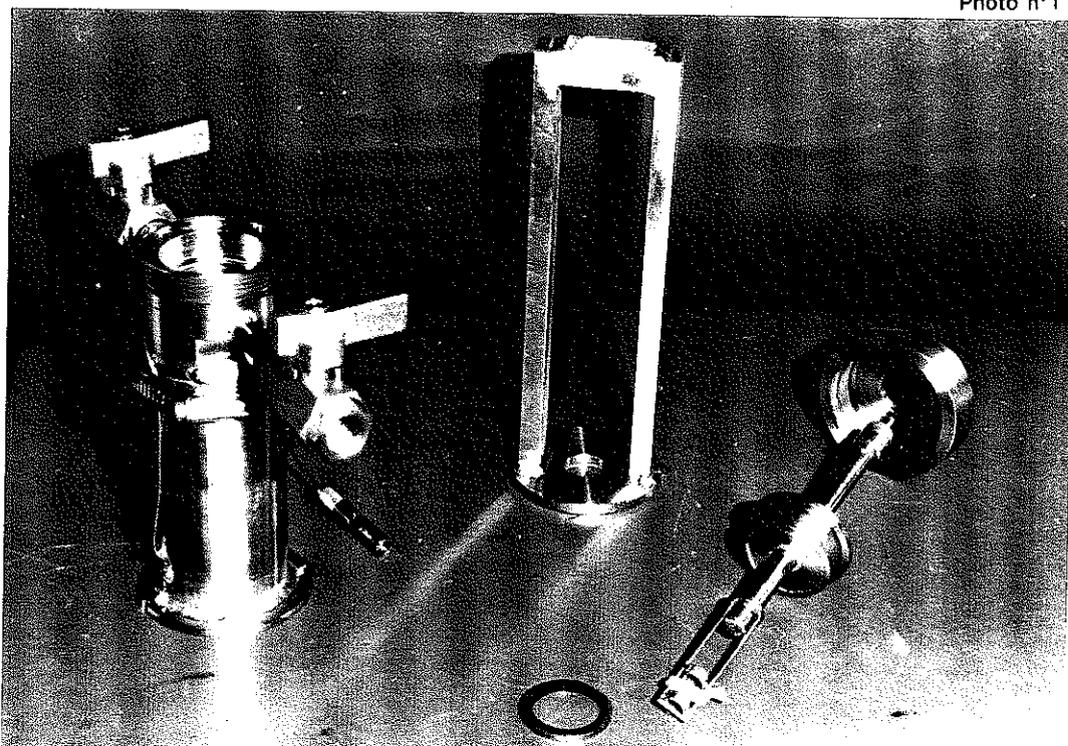
-le composé le plus probable est bien du molybdate de césium et il est par contre pratiquement exclu de considérer de l'uranate.

Ces trempages sont de fait une machine à extraire les composés de césium non liés au combustible irradié et, de ce point de vue, les conclusions issues des présentes expériences n'ont fait que renforcer les représentations actuelles des phénomènes et composés concourant à la formation et à la composition du JOG. Cette méthode ne se limite pas forcément aux seuls combustibles RNR et de nouveaux essais vont être réalisés pour vérifier dans quelle mesure le départ des composés de césium s'accompagne de celui des gaz intergranulaires.

REFERENCES

- (1) Fission product behaviour in Phenix Fuel pins at high burn-up.
M. Tourasse, M. Boidron, B. Pasquet.
ERMS 1991 FALL MEETING
Symposium E: Nuclear materials for fission reactor.

Photo n°1



le conteneur et ses éléments

Photo n°2



le conteneur sur le système de chauffage

Photo n°3

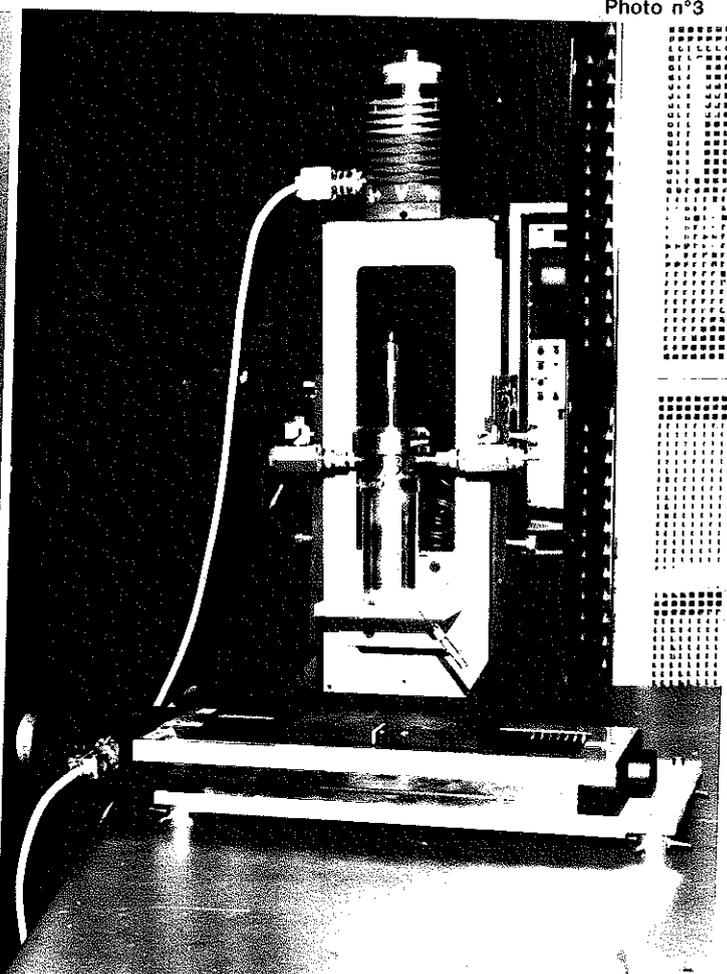
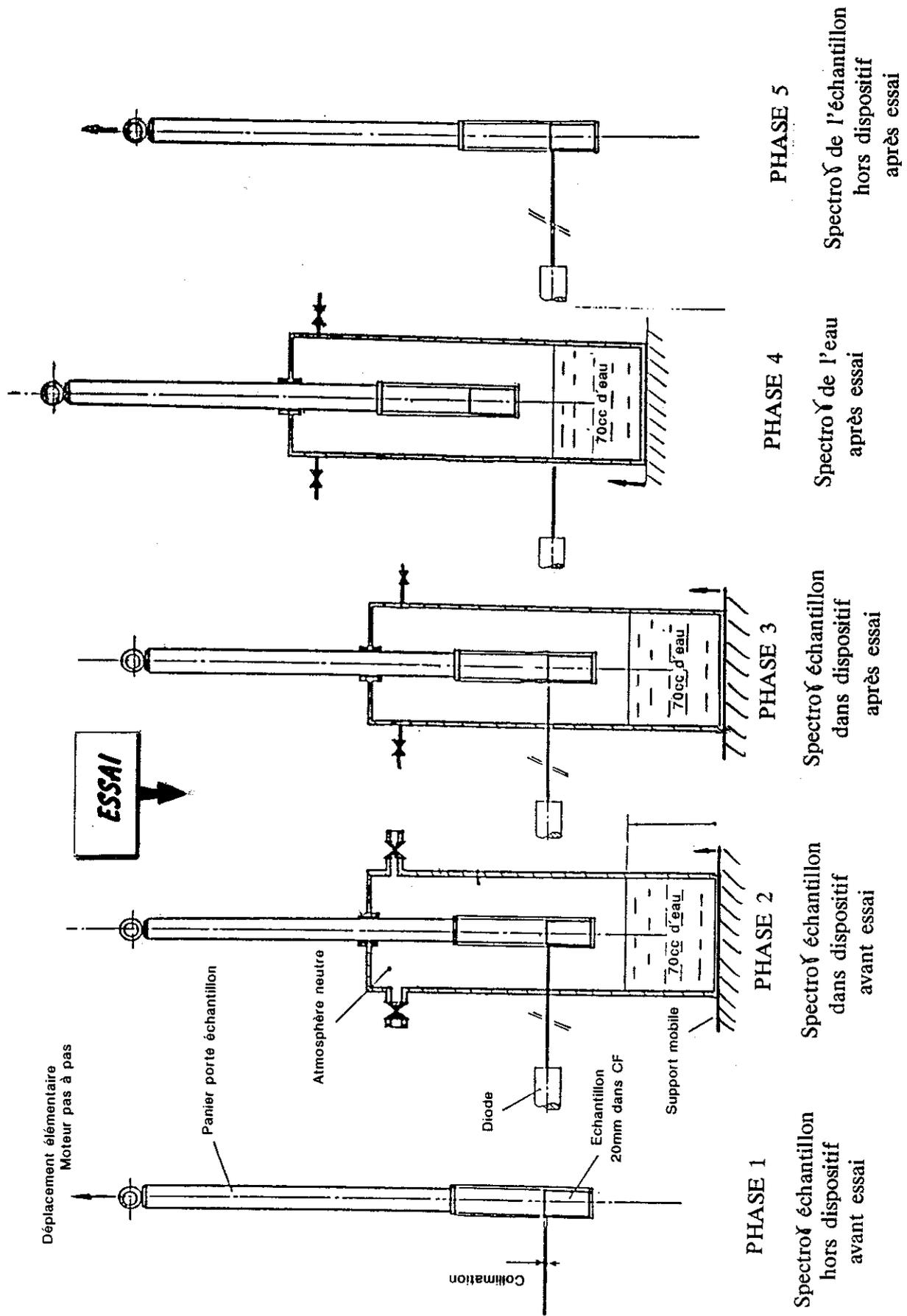


table de déplacement avec le conteneur

FIGURE: 1



SCHEMA DES DIFFERENTES PHASES D'ANALYSES DE SPECTROGAMMAMETRIE

FIGURE: 2

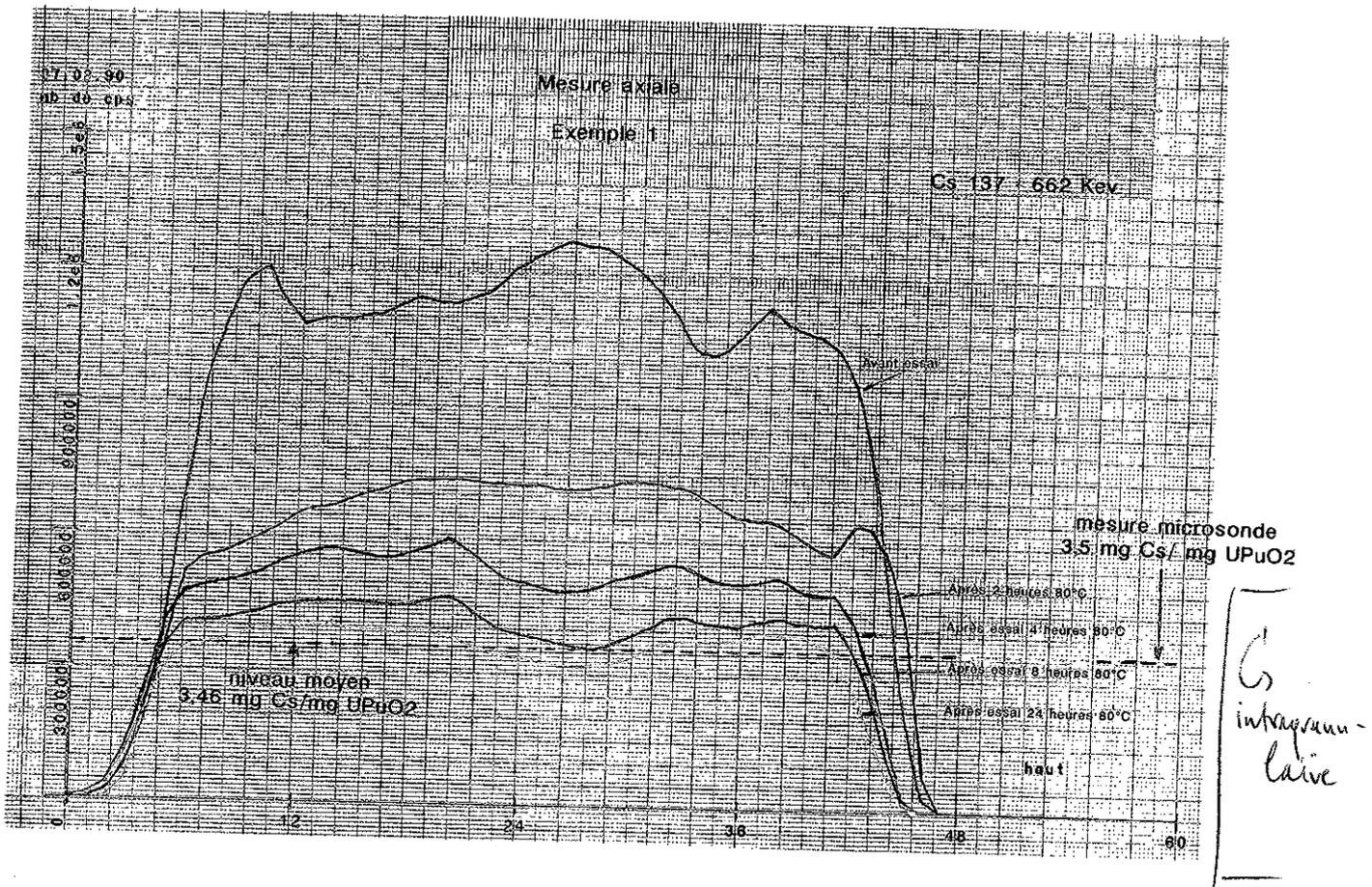
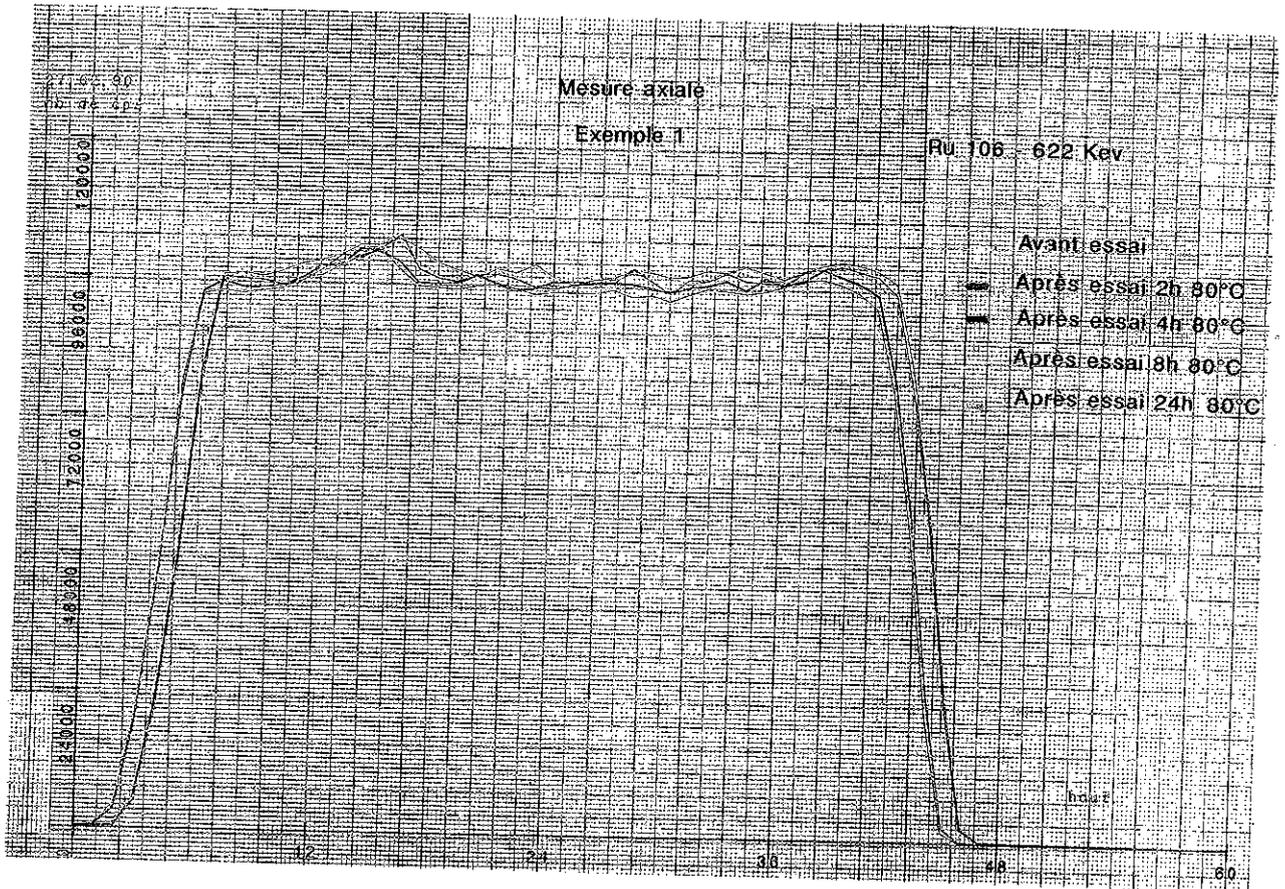


FIGURE: 3

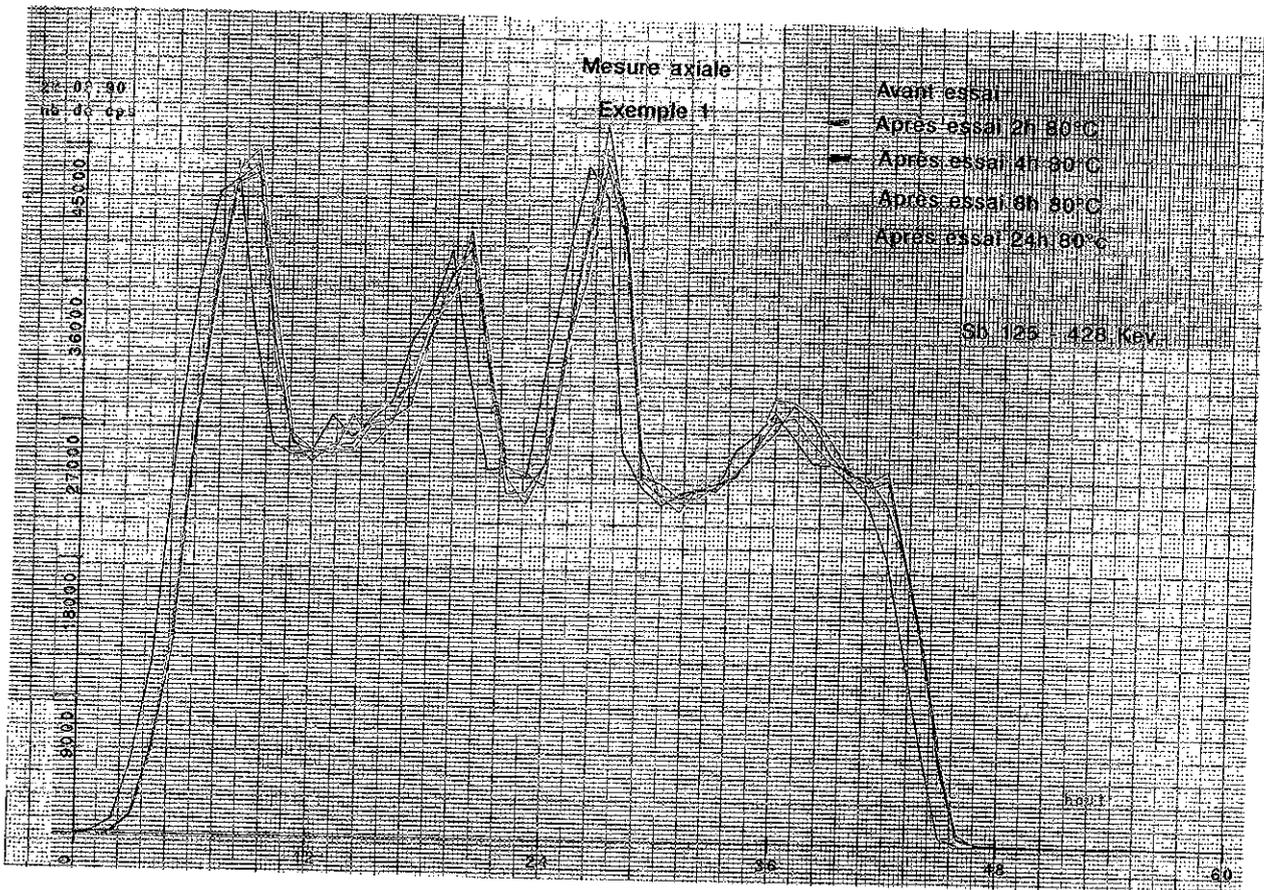
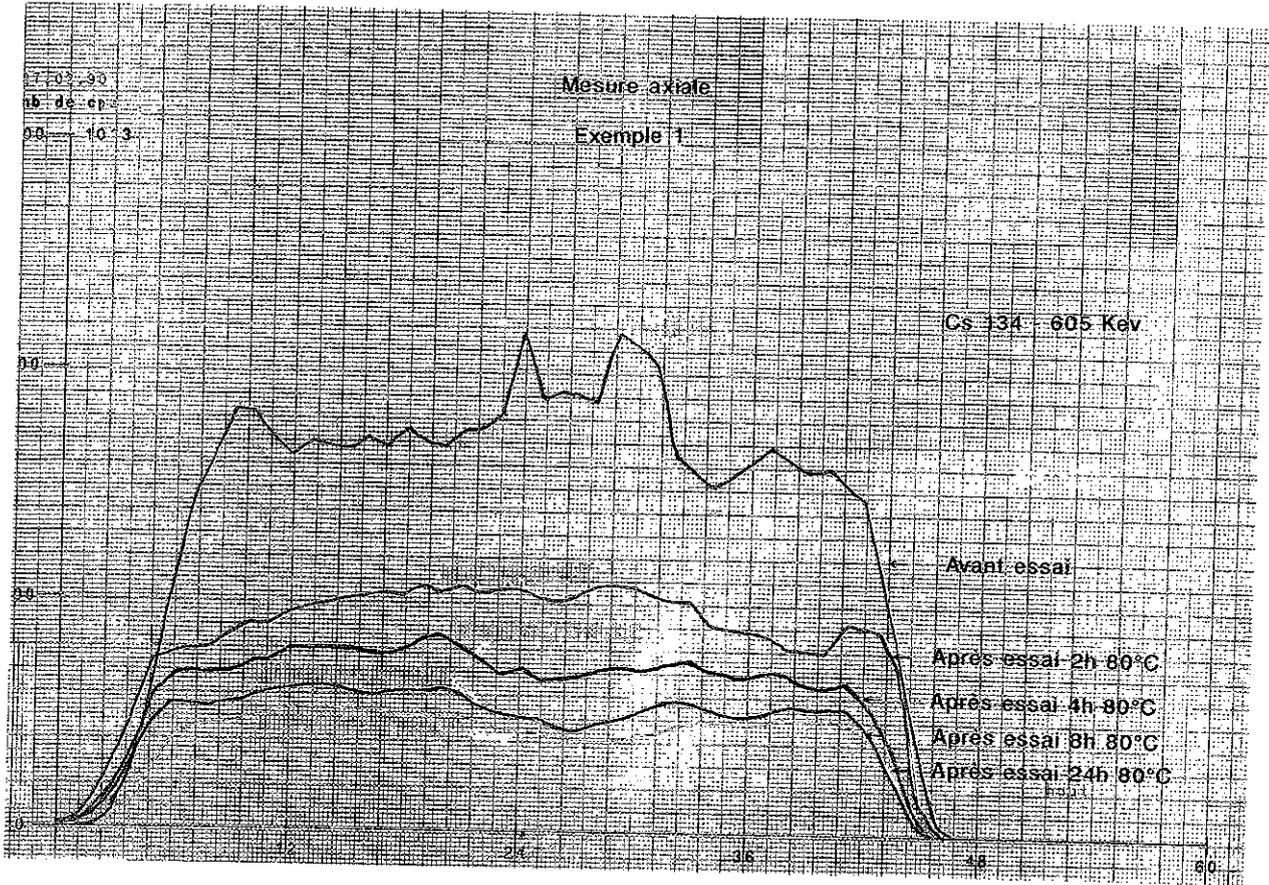


FIGURE: 4

RELACHEMENT EN EAU DU CESIUM exemple 1 à 5

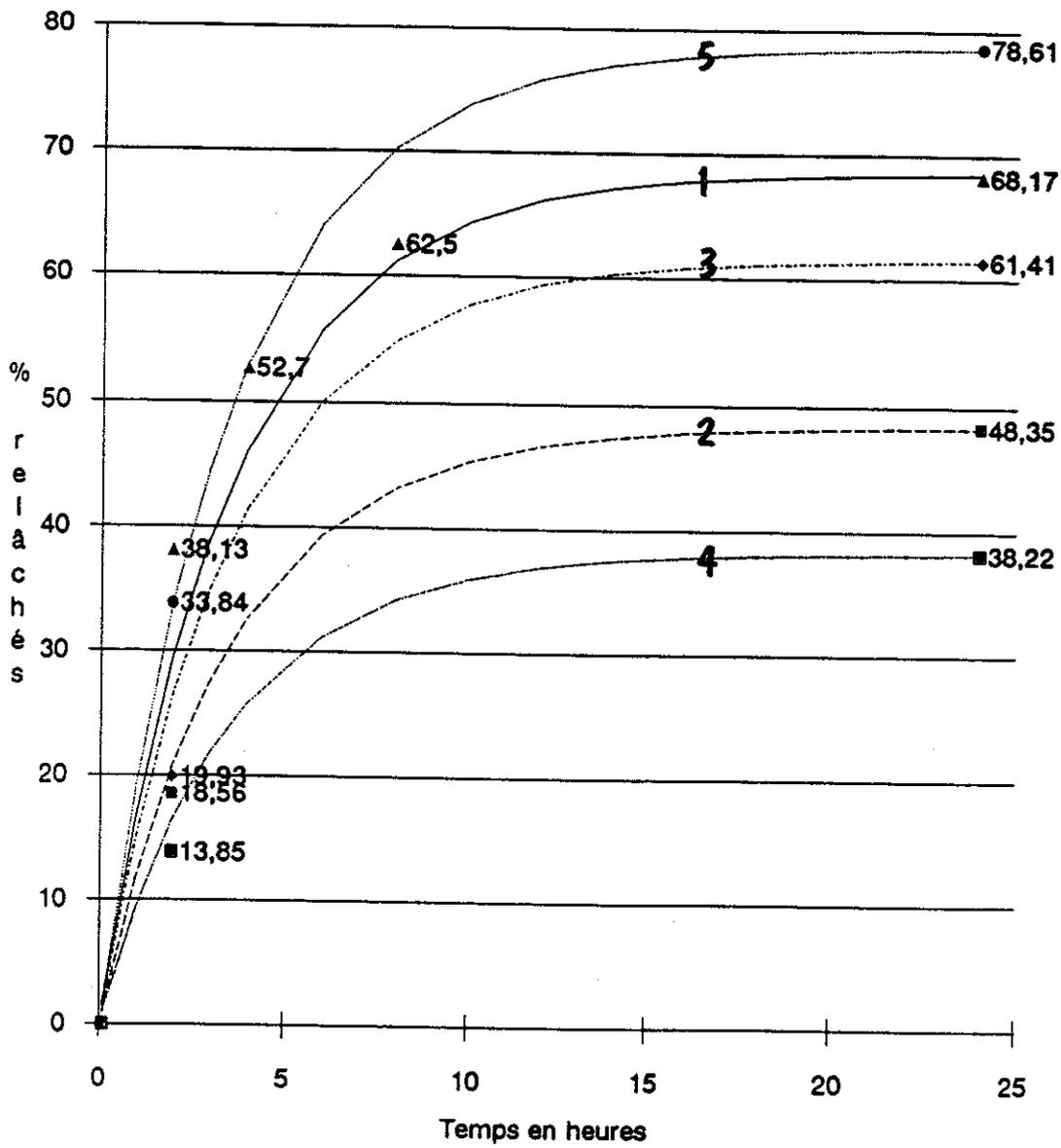


FIGURE: 5

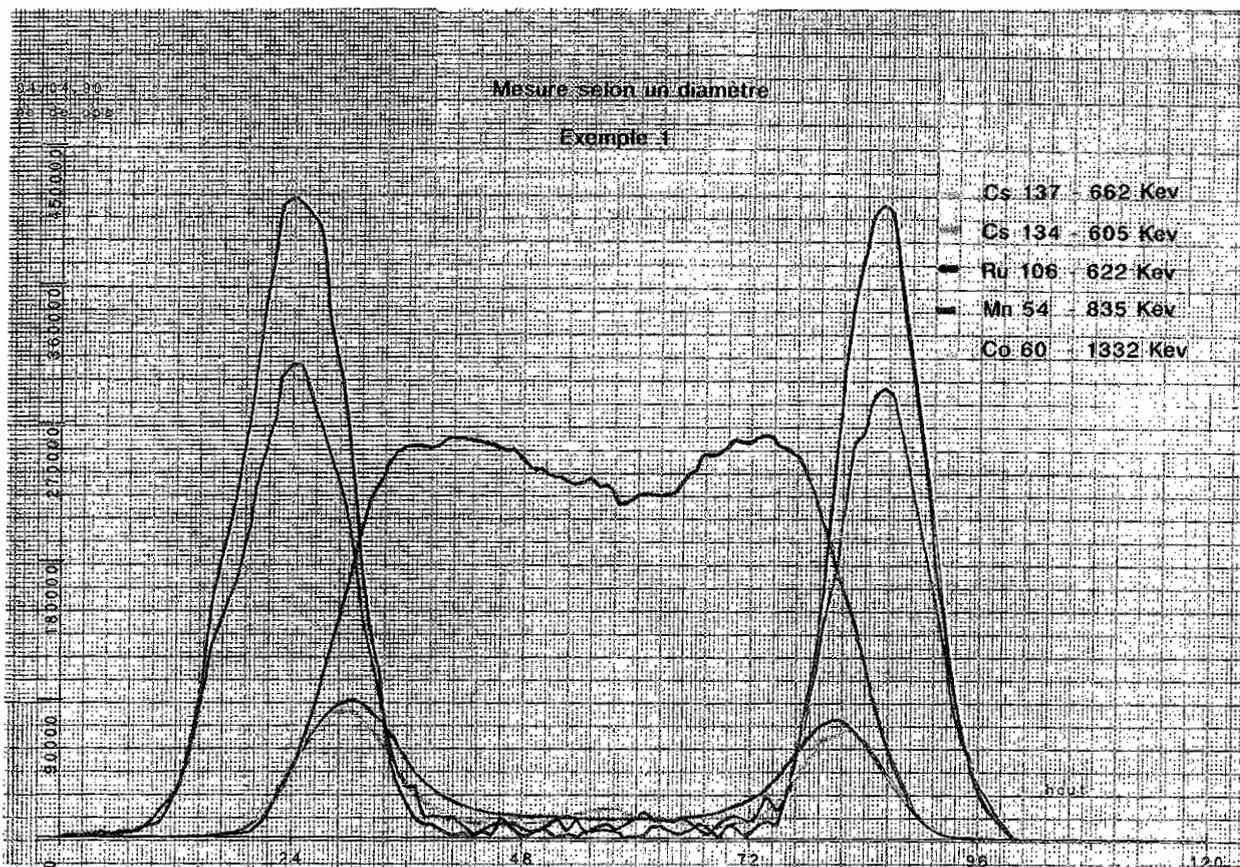
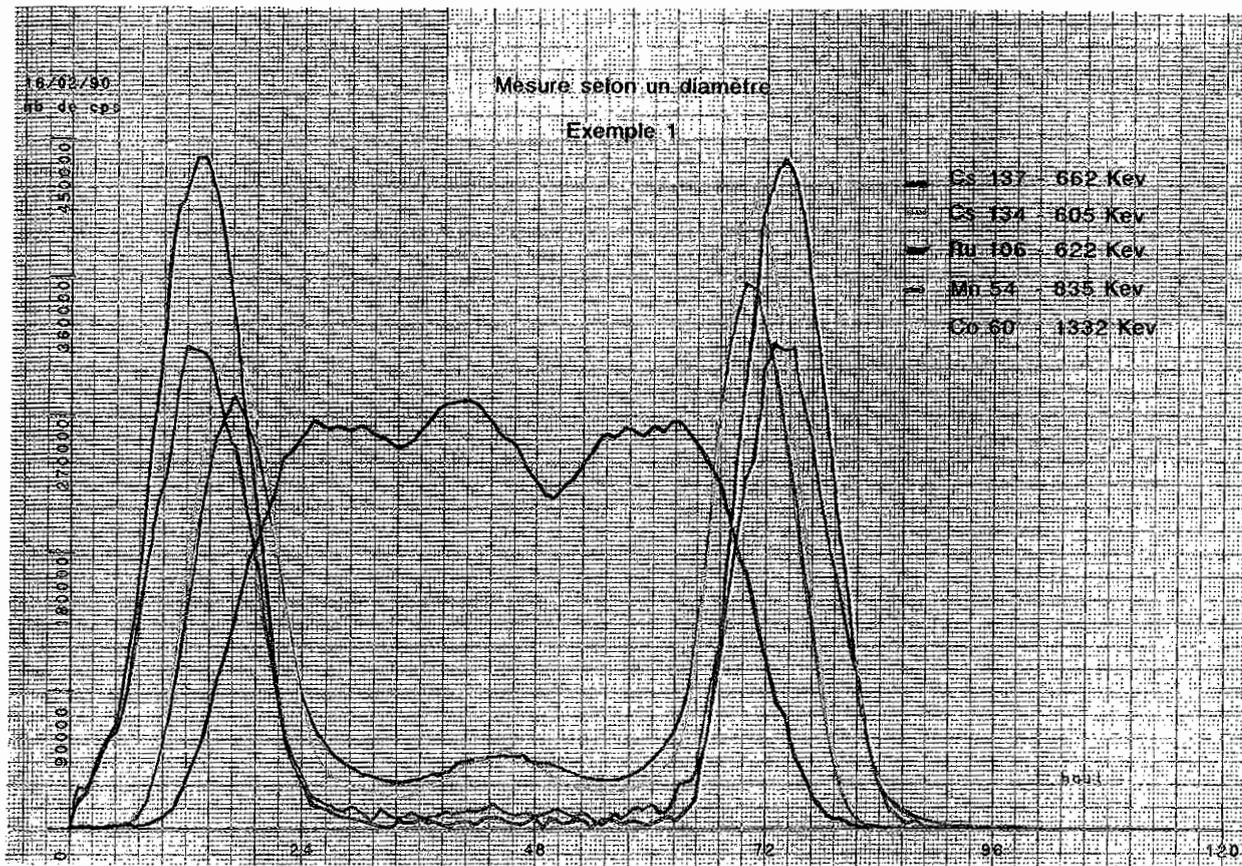


FIGURE: 6

R% Cs 134 en fonction R% Cs 137 exemple 1 à 5

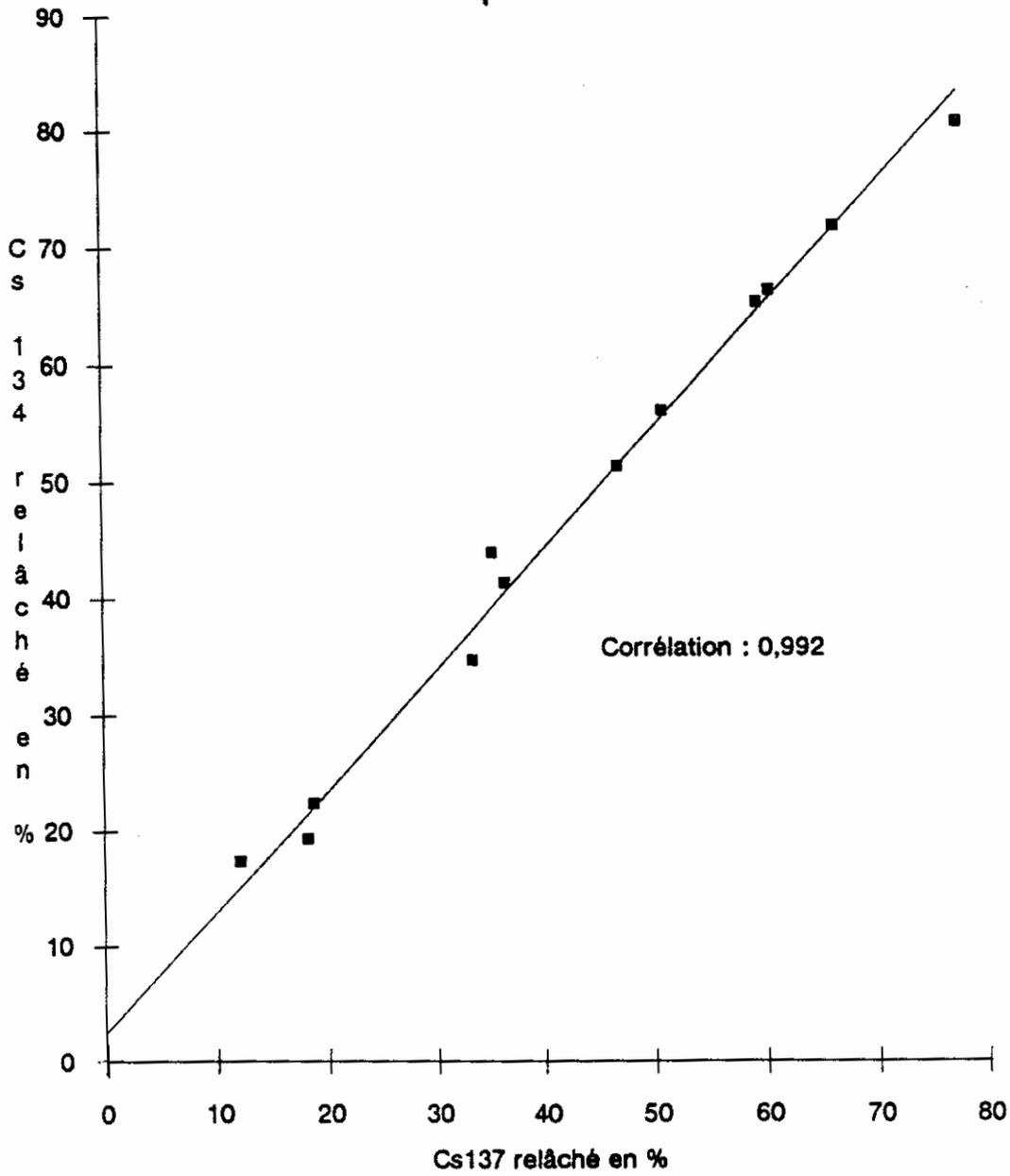


FIGURE: 7