

C.E.A. - C.E.N. GRENOBLE

DIRECTION DES REACTEURS NUCLEAIRES

DEPARTEMENT DE THERMOHYDRAULIQUE ET DE PHYSIQUE

SERVICE D'ETUDES DU COMPORTEMENT DES COMBUSTIBLES

Le 13 juin 1991

COMPTE RENDU DTP/SECC/LRMC n° 12/91

**ASPECTS TECHNIQUES DE PREPARATION ET D'EXAMENS D'ECHAN-
TILLONS IRRADIES AU MEB ET AU MET.**

G. EMINET - Y. FAURE

Texte d'une communication à présenter à la réunion du Groupe de Travail Européen sur les
laboratoires chauds :

25 - 26 JUIN 1991 - BARNWOOD - Gloucestershire - U.K.

Centre d'Etudes Nucléaires de GRENOBLE - 85 X F 38041 Grenoble cédex

SOMMAIRE

I- INTRODUCTION

II- LE M.E.B.

II-1 Préparation des échantillons

II-1-1 Le microcarottage par ultrasons

II-1-2 Les observations M.E.B

II-1-3 Autres types de prélèvements

III- LES EXAMENS AU M.E.T.

III-1 Le M.E.T

III-2 Elaboration des lames minces en Zircaloy

III-3 Elaboration des lames d'UO₂

IV- ANALYSE E.D.S. SUR ECHANTILLONS RADIOACTIFS

IV-2 Traitement des spectres d'échantillons radioactifs

IV-2-1 Le spectre spontané

IV-2-2 Perte de résolution en présence de photons gamma

IV-2-3 Soustraction du spectre spontané

IV-2-4 Pratique de l'analyse quantitative

IV-2-5 Analyse quantitative d'un échantillon radioactif

IV-2-6 Limitation de l'analyseur et améliorations

V- CONCLUSION

ASPECTS TECHNIQUES DE PREPARATIONS ET D'EXAMENS D'ECHANTILLONS IRRADIES AU M.E.B ET AU M.E.T

Résumé.

Au sein du C.E.A, implanté à GRENOBLE, le Service d'Etude du Comportement du Combustible (SECC), se trouve le Laboratoire d'Analyse et de Mesure Haute Activité (LAMA) qui est spécialisé entre autres dans les examens destructifs et non-destructifs des crayons combustibles provenant soit de réacteurs de puissance, soit de réacteurs expérimentaux. Utilisateur de ce laboratoire il dispose, entre autres équipements, d'un Microscope Electronique à Balayage (M.E.B), installé en cellule blindée, et d'un Microscope Electronique à Transmission (M.E.T) installé en zone contrôlée.

Ces deux microscopes sont utilisés dans les études sur le comportement de l' UO_2 sous irradiation du point de vue du relâchement des gaz de fission. Les échantillons sont obtenus soit par microprélèvements effectués sur une pastille d' UO_2 par la technique du microcarottage, soit à partir de billes d' UO_2 de 1 mm de diamètre. Pour chacun des cas on observe un faciès de rupture au M.E.B et la microstructure au M.E.T sur des lames minces, obtenues par polissage mécanique et amincissement ionique. Tous ces échantillons sont préparés en cellules blindées.

A chacun des microscopes est associé un système d'analyse par Spectromètre Dispersif en Energie (E.D.S). Nous avons mené une étude dans ce domaine pour étudier l'influence de l'activité propre des échantillons observés sur le détecteur Si/Li : en optant pour un détecteur, dont la remise à zéro de la capacité du préampli est pulsée par transistor et en faisant la calibration du système d'analyse en présence de l'échantillon actif, il est possible d'obtenir des résultats en analyse quantitative.

Nous présentons les installations et techniques de préparations d'examens de combustible ainsi que quelques résultats caractéristiques de combustibles irradiés.

I - INTRODUCTION

La compétence du Service d'Etude du Comportement du Combustible (S.E.C.C), un des trois services du Département de Thermohydraulique et de Physique (D.T.P) dépendant de la Direction des Réacteurs Nucléaires (D.R.N), se situe dans la conception, l'irradiation et l'analyse post-irradiatoire d'expériences analytiques sur les crayons combustibles REP, afin de définir les mécanismes mis en jeu lors de l'interaction pastille-gaine, du relâchement des gaz de fission, en fonctionnement normal, incidentel ou en suivi de charge (rampe de puissance) et accidentel.

Les analyses post-irradiatoires se font au Laboratoire d'Analyses et de Mesures Haute Activité (LAMA), qui fait parti du S.E.C.C. Dans ce laboratoire sont installés un microscope électronique à balayage en cellule blindée (M.E.B-JEOL JSMT-330A), et un microscope électronique à transmission (M.E.T-JEOL 1200EX) en zone contrôlée. Ils sont tous deux équipés d'un système d'analyse dispersif en énergie (E.D.S).

Les échantillons observés, élaborés en cellules blindées, sont, pour le M.E.B, des surfaces de ruptures, pour le M.E.T, des lames minces, obtenues soit à partir de billes d' UO_2 de 1 mm de diamètre soit à partir de microcarottes de 3mm de diamètre prélevées par microcarottage ultrasonore dans des pastilles d' UO_2 .

Le rayonnement propre des échantillons radioactifs perturbe les analyses qualitative et quantitative des échantillons, avec l'émission d'un "spectre spontané". C'est le spectre obtenu sans faisceau électronique du microscope, caractérisé par un temps mort d'acquisition très élevé pouvant même atteindre 100 % et conduire à l'impossibilité d'analyser.

II- Le M.E.B (Fig.1)

Ce microscope est installé en cellule blindée. Pour ce faire, la colonne électronique est séparée et placée seule à l'intérieur de l'enceinte blindée. Le groupe de pompage ainsi que la cuve haute tension sont repoussés à l'extérieur. Toutes les liaisons électriques et la liaison vide entre la chambre objet et les pompes sont rallongées. Seul le câble haute tension n'est pas modifié.

La platine échantillon du microscope est motorisée sur les axes X,Y,Z,Rot. Le tilt se manoeuvre mécaniquement au télémanipulateur, à l'aide d'un renvoi par pignon et chaîne.

Le détecteur d'électrons secondaires a été modifié. Le guide de lumière, droit à l'origine, est remplacé par un guide de lumière coudé (adaptation du guide de lumière du JEOL-JSM 840). Cette modification limite au maximum la perturbation, au niveau du photomultiplicateur du détecteur d'électrons secondaires, due au rayonnement de l'échantillon et qui se traduirait par un bruit important sur l'image du microscope.

II-1 Préparation des échantillons

Les études menées au sein du laboratoire concernent principalement la microstructure de l' UO_2 et la caractérisation d'aérosols émis par un crayon combustible en fonctionnement accidentel. On est aussi amené à examiner des faciès de rupture d'éprouvettes d'essais mécaniques.

II-1-1 Le microcarottage par ultrasons (Fig.2)

Cette technique concerne les échantillons d' UO_2 . L'appareillage comprend une sonotrode, un mandrin monté sur une table X,Y et un dispositif de visée. La sonotrode est montée sur une potence mobile, en bout de laquelle se fixe l'outil à carotter. Cet outil est taillé dans la masse, l'embout étant constitué d'un cylindre dont le diamètre intérieur est égal au diamètre de la carotte à prélever.

La pastille d'oxyde d'uranium, dans laquelle on va prélever ces microcarottes, est enrobée dans un moule de métallographie qui est maintenue serrée dans le mandrin fixé sur la table X,Y. Un système de visée par microscope permet un positionnement rigoureux de l'emplacement de la microcarotte, le centre du réticule du microscope étant confondu avec l'axe de la sonotrode.

L'action conjuguée des ultrasons, de l'abrasif constitué par du SiC en suspension dans de l'eau que l'on dépose à l'aide d'un pinceau en bout de l'outil, et du poids de la tête ultrason, permet d'obtenir une microcarotte.

La longueur du prélèvement est de l'ordre de 2 mm ; le diamètre étant compris entre 0,3 mm et 2 mm. La récupération de microcarottes, qui se fait à l'aide d'un ringard que l'on passe dans l'outil une fois celui-ci désolidarisé de la sonotrode, est difficile pour les petits diamètres, mais devient plus aisé à partir de 0,8 mm. Parfois, suivant l'état de fissuration du combustible, on ne peut récupérer que des fragments de carottes.

On peut réaliser ainsi trois microcarottes sur le rayon d'une pastille de combustible REP, ce qui permet de suivre le gradient de température de la pastille. La microcarotte récupérée est collée sur un petit plot aluminium et transportée par un petit château de transfert manuel jusqu'à la cellule du microscope électronique.

II-I-2 Les observations au M.E.B

Avant toute observation il est nécessaire de rendre conducteur l'échantillon, par évaporation d'une tresse de carbone. A cet effet un évaporateur or/carbone est installé dans la cellule du M.E.B.

On peut tout de même observer au M.E.B de l'UO₂ sans dépôt conducteur si la microcarotte est collée avec une colle conductrice telle que de la laque de carbone. Il est néanmoins impératif de passer par une mise sous vide dans l'évaporateur afin de limiter la contamination dans la chambre du microscope. Le plot aluminium est ensuite collé sur un support échantillon adapté au M.E.B et introduit dans la chambre du microscope.

Toutes ces opérations se font à l'aide de deux télémanipulateurs. Les fig.3 et 4 [1] illustrent l'évolution du faciès des joints de grains que l'on peut observer à l'intérieur d'une même carottes. On est plus particulièrement attentif à la formation et l'association des précipités métalliques et des bulles de gaz de fission qui coalescent à la surface des joints.

II-I-3 Autres types de prélèvements

a) sur l'UO₂

Une étude analytique sur le gonflement de l'oxyde d'uranium sous irradiation mené dans le service, avait conduit à l'élaboration de billes de combustibles de 1mm de diamètre. La température et le taux de combustion de ces billes étant bien connus, l'observation de la morphologie est une source supplémentaire d'informations dans l'étude de la cinétique de relachement des gaz de fission. Pour pouvoir observer un faciès de rupture il est nécessaire de rompre la bille en deux morceaux. Ceci se fait simplement par l'intermédiaire d'un micromètre en plaçant la bille entre la partie mobile et la partie fixe. On obtient ainsi deux demi sphères que l'on va coller sur le plot aluminium. Le reste de la manipulation est identique à celle mise en oeuvre précédemment.

b) sur des aérosols

Dans le cadre d'une étude de sureté, on est amené à caractériser des aérosols déposés sur des filtres. Le prélèvement se fait à l'aide d'un petit plot en aluminium qui a été préalablement encollé à l'extérieur de la cellule.

Cette colle a deux caractéristiques qui sont d'être transparente à l'analyse X et de fondre à basse température ($\sim 40^\circ$). En cellule le plot est monté sur une chaufferette et, une fois la colle à la bonne température, un système de levier abaisse le plot sur le filtre et on réalise ainsi le prélèvement, qui est transféré à la cellule du M.E.B avec le château de transfert manuel. On carbone systématiquement l'échantillon avant observation.

Si les aérosols ne se sont pas directement accessibles, comme par exemple ceux retenus dans des filtres en 'lit de billes', on passe ces filtres dans un bac ultrason contenant un solvant approprié. Le solvant, chargé de ses aérosols, sera ensuite filtré à travers une série de filtres 'Nucléopores' de différentes porosités. On les transportera et on les carbonera à la cellule du M.E.B suivant la procédure habituelle.

III- LES EXAMENS AU M.E.T

III-1 Le M.E.T (Fig.5)

Ce Microscope Electronique à Transmission, équipé de l'accessoire balayage, est installé en zone contrôlée, mais pas en cellule blindée, la faible dimension des échantillons observés limitant suffisamment les débits de dose des échantillons. Ceci permet aussi de travailler, sans trop de contraintes, sur des matériaux non radioactifs.

Il faut donc élaborer des lames minces, qui sont des échantillons de 3mm de diamètre et d'épaisseur maximum 100 μm . Nous travaillons sur deux types de matériaux qui sont l'UO₂ et le zircaloy. Tous les échantillons actifs sont préparés en cellule blindée.

III-2 Elaboration des lames minces en Zircaloy

L'échantillon de départ est un tube de gainage d'environ 20 mm de long et de 9,5 mm de diamètre. Ce tube est coupé en 4 tuiles par tronçonnage longitudinal. Chaque tuile est ensuite collée, sur sa face extérieure, sur le porte échantillon d'une polisseuse mécanique. On polit mécaniquement la tuile, avec des papiers abrasifs de grade 80 à 1200, jusqu'à la côte correspondant à l'épaisseur de la toile du tube. Un comparateur, monté sur le porte-échantillon de la polisseuse, donne une indication de l'amincissement de l'échantillon. Cet amincissement est contrôlé régulièrement et précisément par un mesureur d'épaisseur installé à côté de la polisseuse. On obtient ainsi un échantillon d'environ 500 μm d'épaisseur et de 4 mm de large.

L'étape suivante consiste à décoller cette plaquette, à la retourner et la recoller. On poursuit le polissage mécanique jusqu'à une épaisseur de 80 à 100 μ m. On décolle à nouveau cette plaquette, on la nettoie et on passe à l'ultime étape qui est le poinçonnage. Pour cela on place la plaquette sous un poinçon qui est activé par la chute d'une masse métallique. La lame mince est récupérée dans un conteneur placé en-dessous de la poinçonneuse. On peut ainsi découper 3 ou 4 lames minces dans une plaquette.

L'amincissement final de la lame se fait par amincissement électrochimique dans une boîte à gants. Le transport entre la cellule blindée et la boîte à gants se fait par château manuel. La lame mince est insérée dans le porte-échantillon de l'amincisseur électrochimique de type 'Tenupol'. Cette manipulation n'est possible qu'après vérification du faible débit de dose émis par la lame mince et par la rapidité de mise en place dans l'amincisseur électrochimique.

III-3 Elaboration des lames d'UO₂

Les lames d'UO₂ sont élaborées soit à partir des petites billes de 1 mm de diamètre, les mêmes que celles utilisées pour les observations au M.E.B, soit à partir de microcarottes de 3 mm de diamètre.

On réalise tout d'abord une imprégnation à l'araldite de l'échantillon de combustible dans un moule en plexiglass de 5mm de hauteur. On colle le moule sur le support échantillon de la polisseuse mécanique et on polit, au papier 80 à 1200, jusqu'à apparition du combustible dans le cas d'une carotte, et jusqu'au diamètre dans le cas d'une bille. Ensuite on décolle et on retourne le moule et le polissage se poursuit jusqu'à obtention d'une disque d'environ 100 μ m d'épaisseur.

On transfère ensuite, par château manuel, le disque en plexiglass contenant la lame de combustible vers la boîte à gants. On récupère la lame de combustible en découpant le disque de plexiglass. La lame de 1 mm de diamètre doit être collée sur une rondelle de cuivre de 3 mm percée d'un trou de 0,5mm, pour avoir un montage compatible avec le porte échantillon du M.E.T.

L'amincissement final se fait par amincissement ionique. L'appareil utilisé, un 'GATAN' (Fig.6), est installé en zone contrôlée, mais pas en cellule blindée. Seul un de ses deux postes de travail est utilisé pour le travail sur des échantillons actifs. Ce poste est équipé d'une hotte ventilée et d'un sas d'introduction. Le transfert entre la boîte à gants et l'amincisseur ionique se fait par un château de transfert manuel, spécialement conçu à cet effet, qui reste sur le poste de travail au cours de l'amincissement. Celui-ci fini, on se transporte à nouveau dans la boîte à gants pour monter la lame sur la canne porte-échantillon du M.E.T.

Pour le transfert jusqu'au M.E.T on adapte en bout de la canne une protection plomb. Compte tenu des activités mesurées : 800mradh^{-1} Béta et 100mradh^{-1} Gamma pour ce type d'échantillon combustible, l'introduction de la canne dans le microscope se fait sans protections supplémentaires. Pour les échantillons présentant une plus forte activité, une protection particulière pour l'introduction des échantillons dans le M.E.T. est nécessaire.

IV- ANALYSE E.D.S. SUR ECHANTILLON RADIOACTIFS [2].

L'analyse par spectrométrie dispersive en énergie d'échantillons radioactifs se caractérise par deux phénomènes qui sont :

- * apparition d'un spectre "spontané" sur l'analyseur sans faisceau électronique du microscope
- * ce spectre "spontané" se caractérise par un nombre de coups très élevé à l'entrée du détecteur avec un temps mort important qui peut aller jusqu'à 100%, mais ce temps mort va diminuer dès que l'on met le faisceau électronique du microscope.

Nous nous sommes attachés à comprendre les phénomènes mis en jeu et à savoir comment prendre en compte le spectre 'spontané' pour réaliser un traitement quantitatif des spectres acquis sur échantillons actifs. L'étude a porté sur l'analyseur LINK AN-10.85S installé sur le M.E.B.

IV-I Variation du taux de comptage

Dès qu'un échantillon actif est introduit dans la chambre du microscope, on obtient un spectre "spontané", sans faisceau électronique du microscope. Le temps mort peut atteindre 100% et bloquer ainsi l'analyseur. Dans le cas où l'analyseur n'est pas bloqué, on observe une diminution du temps mort, qui peut être de moitié, en présence du faisceau électronique du microscope comme on peut le voir sur la fig.7.

L'activité des échantillons se caractérise par une émission Béta (électrons) et des Gammas (X de fortes énergies) qui vont perturber la chaîne de mesure de l'analyseur (fig.8). Cette perturbation va se concrétiser par des impulsions de très fortes amplitudes. La fig 10 présente les éléments de la chaîne de mesure d'un analyseur E.D.S.

L'observation des signaux à la sortie du Préamplificateur (P.A) et à l'entrée du Convertisseur Analogique-Digital(C.A.N) permet de comprendre la variation du temps mort.

La fig.9 montre des impulsions de fortes énergies à la sortie du P.A. On constate, par le signal à l'entrée du C.A.N, qu'elles ne sont pas codées. La chaîne de mesure limite l'énergie des impulsions X à 80 KeV. Pour des énergies supérieures à 360 KeV on aura à chaque fois une remise à zéro de la capacité du P.A. Pour des X, dont les énergies sont comprises entre 80 et 360 KeV on aura des marches sur le signal de sortie du P.A mais qui ne seront pas prises en compte au niveau du C.A.N.

Le temps mort total, visualisé sur l'écran de l'analyseur, est la somme de deux temps morts partiels, l'un provenant du "Signal Busy", l'autre du "Signal Logique 2":

* Le "Signal Busy" est un signal logique, qui à chaque fois qu'il est à zéro, met la chaîne de mesure en temps mort. Ce signal est à zéro pendant toute la durée de décharge de la capacité du P.A, augmenté d'un "temps de restauration" nécessaire pour ne pas apporter de perturbations dans la chaîne de mesure. Sa durée est comprise entre 80 et 150 μ s. Il passe aussi en temps mort pendant le temps de traitement d'une impulsion X, qui est de l'ordre de 70 μ s.

* Le "Signal Logique 2", qui provient d'un bistable, permet de compenser la perte de photons X au cours des rejets d'empilements. Si deux photons X arrivent de manière trop rapprochées, et afin d'éviter un empilement des deux signaux, ce signal logique passe en temps mort jusqu'à la prochaine impulsion X à traiter.

Le Tableau 1 récapitule les valeurs des temps morts partiels et totaux dans le cas d'un échantillon actif et inactif (voir page suivante)

| Nb de cps entrée du détecteur | Valeur du temps mort (%) | | Total |
|----------------------------------|--------------------------|--------------|-------|
| | Signal 'Busy' | Signal log.2 | |
| -----échantillon inactif----- | | | |
| 800 | 9 | 5 | 14 |
| 1100 | 11 | 5 | 16 |
| 1800 | 16 | 8 | 24 |
| 6000 | 32 | 19 | 47 |
| -----échantillon actif----- | | | |
| 800 * | 28 | 72 | 79 |
| 1100 ** | 21 | 56 | 66 |
| 1800 ** | 17 | 39 | 48 |
| 6000 ** | 33 | 23 | 51 |

* : Gammas seuls (sans faisceau électronique)

** : Gammas + X (avec -----)

Tableau 1

Temps morts partiels et totaux avec un échantillon actif et inactif.

On constate que, pour un nombre de photons X identiques à l'entrée du détecteur, le signal "Busy" conduit à un temps mort 3 fois plus élevé avec un échantillon actif qu'avec un échantillon inactif. Ceci est dû à l'augmentation du temps de décharge de la capacité. Le temps mort passe ensuite par un minimum avec une valeur identique à celle trouvée avec un échantillon inactif. Le temps mort affiché sur l'analyseur varie comme le temps mort du "Signal Busy".

La fig.10 représente la variation du signal logique 2 en fonction du signal de sortie du P.A, en présence de rayons X et de rayons gamma (10-a) et de gamma seuls (10-b). On constate que le fait d'introduire des rayons X permet un retour en position de comptage plus fréquent du signal logique 2, d'où une baisse significative et constante du temps mort. On peut remarquer que les fortes impulsions ne provoquent pas systématiquement une mise à zéro du signal.

La fig.11 montre la variation du signal logique 2 à la suite d'un rejet d'empilement dû à deux photons X arrivant dans un intervalle de temps de $0,5\mu s$. La marche, d'une centaine de mV, est due à une succession d'au moins 6 photons X qui sont trop rapprochés pour permettre au signal de repasser en position de comptage. Cet empilement résulte soit d'une succession de rayons X qui arrivent sur le détecteur de manière aléatoire soit du résultat de l'interaction du rayonnement Béta ou Gamma avec les atomes de Si du détecteur.

Le temps mort élevé mesuré sur le signal logique 2, et par conséquent sur le temps mort total, est dû au fait que chaque photon de forte énergie (Gamma) qui interagit avec le détecteur va créer plusieurs photons par diffusion Compton qui vont être considérés par l'analyseur comme un empilement et vont donc être rejetés. Le retour en position de comptage va dépendre du nombre de photons X codables qui vont arriver sur le détecteur. En présence du faisceau électronique, ces derniers sont très nombreux, et vont donc contribuer à un retour en position de comptage et par voie de conséquences à une diminution du temps mort.

IV-2 Traitement des spectres sur échantillons radioactifs

Quand on analyse un échantillon radioactif, on a, sans faisceau électronique, un spectre spontané, qui se caractérise par un fond continu et des raies discrètes. Il est nécessaire de savoir analyser ce spectre afin d'effectuer un traitement quantitatif sur des échantillons radioactifs.

IV-2-1 Le spectre spontané

La figure 12 donne l'allure typique d'un spectre spontané, émis par un échantillon U-Ni. Il est enregistré dans la gamme 0-40KeV et on trouve les raies du Ba,Pr,Te,Sn,Ni,Mn.

Toutes les raies supérieures à 25KeV ne nous intéressent pas compte-tenu du fait que la tension de travail sur un M.E.B dépasse rarement les 25 KV. Ce n'est pas le cas pour un M.E.T.

Les émetteurs Gammas mesurés par spectrométrie Gamma, sont récapitulés dans le tableau 2.

| Radionucléides | Energie KeV | Activité | |
|----------------|----------------|----------|-------|
| | | Bq | mCi |
| Ru 106 | 511/622 | 4,6E+6 | 0,12 |
| Sb 125 | 428/600 | 6,7E+5 | 0,02 |
| Cs 134 | 605/796 | 1,3E+6 | 0,04 |
| Cs 137 | 662 | 2,5E+7 | 0,68 |
| Ce 144 | 133/697 | 1,8E+7 | 0,49 |
| | | ----- | ----- |
| | | 4,95E+7 | 1,35 |

Tableau 2
Résultats de spectrométrie Gamma

Les raies X du Te proviennent de la décroissance de Sb125 qui va donner par désintégration β du Te125m lequel va donner par émission Gamma du Te125 stable.

A cette émission Gamma est associée, par réarrangement du cortège électronique, une émission de photons X caractéristique du Te.

Il en est de même du Ba qui provient de la chaîne Cs137-Ba137m-Ba137 stable.

Les raies du Pr144 proviennent de la décroissance du Ce144 qui conduit à des états excités du Pr144 qui retourne à l'état stable par émission X.

Les raies K du Ni sont dues à l'excitation du Ni, élément prépondérant - 97% en poids -, par le propre rayonnement de l'échantillon par un phénomène de fluorescence.

L'intensité du fond continu va dépendre de l'activité de l'échantillon, de la même manière que le fond continu dépend de la tension d'accélération des électrons, et présente un pic vers les faibles énergies en plus du pic maximal caractéristique de tout spectre continu.

IV-2-2 Perte de résolution en présence de photons gamma

Des spectres étalons sur du Cu et du Ti ont été acquis en présence ou non de Gammas avec une mesure de la résolution à mi-hauteur des pics. Le tableau 3 récapitule ces valeurs .

| Elément | Source | Résolution |
|---------|---------|------------|
| Ti | ----- | 130eV |
| | 0,5 mCi | 212eV |
| Cu | ----- | 163 eV |
| | 0,5 mCi | 182 eV |
| | 1,5 mCi | 236 eV |

Tableau 3
Perte de résolution en présence de gammas

On constate une perte de résolution en présence de Gammas, et de manière d'autant plus importante que l'activité est élevée.

On note par ailleurs un décalage systématique des pics de 1 à 2 canaux vers les hautes énergies. Ceci représente 20eV pour un pic à 8041 eV, soit une erreur de 0,25%.

IV-2-3 Soustraction du spectre spontané

Le traitement quantitatif d'un spectre se fait sur les intensités nettes des pics. Pour étudier la variation de composition d'un élément, dont les raies caractéristiques se trouvent dans le spectre spontané, on conçoit qu'il faille le soustraire du spectre à traiter acquis avec le faisceau électronique. Pour cela on a réalisé sur des échantillons d'acier identiques, l'un étant actif l'autre pas, des acquisitions de spectres "spontanés" et de spectres X, afin de pouvoir comparer les spectres "X+Gammas"-"Gammas"[*spectre acquis sur échantillon actif avec faisceau électronique - spectre continu*] au spectre X acquis sur échantillon inactif.

Le spectre "spontané" et le spectre à étudier ont tout d'abord été acquis avec le même temps effectif de comptage [*même Live Time*] de 100s. Si on compare les valeurs du rapport des intensités nettes des pics Mn et Fe pour le spectre 'X+Gamma'-'Gamma' et pour le spectre 'X', on obtient respectivement $3,57E-3$ et $1E-2$. De toute évidence on ne compte pas le même nombre d'X dans un cas et dans l'autre.

L'autre possibilité consiste à travailler avec un même temps réel d'acquisition pour le spectre spontané et le spectre à étudier. On va acquérir le spectre spontané avec un Live Time de 100s, ce qui va déterminer, compte-tenu du temps mort, un certain temps réel d'acquisition. On acquiera le spectre à étudier avec ce même temps réel d'acquisition. Le rapport des intensités nettes des pics de Mn et de Fe donne $1E-2$ pour le spectre 'X+Gamma'-'Gamma' et pour le spectre X. On peut donc soustraire le spectre spontané au spectre à étudier à condition de les acquérir avec le même temps réel. En effet il faut compter le même nombre de photons gamma et comme leur flux est constant (la période est très supérieure au temps de comptage), cela va dépendre directement du temps réel de comptage.

IV-2-4 Pratique de l'analyse quantitative

La méthode d'analyse quantitative proposée par LINK est une méthode qui nécessite le passage par un élément de calibration et la détermination de la variation de la résolution en fonction du nombre de coups sur le pic zéro.

La variation de résolution permet de déterminer deux paramètres, SN_0 et SN_1 qui sont l'ordonnée à l'origine et la pente de la droite $Résolution=f(Nb \text{ de coups})$. Ces paramètres sont calculés une fois pour toutes, tant qu'il n'y a pas de modifications de la chaîne de mesure. A chaque traitement quantitatif, le calcul de résolution du pic Zéro est effectué, et si celle-ci ne dépasse pas la valeur $(SN_0+10*SN_1+4)$, le traitement peut continuer. Si cette valeur est dépassée, il y a une mauvaise résolution (Poor resolution) et on doit refaire une nouvelle courbe de résolution.

Compte tenu de la perte de résolution en présence de photons gamma, il est impératif de faire la détermination de SNO et SNI en présence de l'échantillon actif.

Le passage par l'élément de calibration permet de calibrer l'analyseur en énergie. Comme il existe un léger décalage du pic maximal en présence de Gammas, il faut aussi faire cette calibration en présence de l'échantillon.

Toute la déconvolution des pics se fait ensuite en utilisant une bibliothèque de standards virtuels ou réels.

IV-2-5 Analyse quantitative d'un échantillon radioactif

Un traitement semi-quantitatif (utilisation de témoins virtuels) sur un échantillon radioactif a été réalisé en étudiant plus particulièrement la teneur en Mn d'un acier.

Le spectre spontané comporte les raies Ka et K β du Mn provenant de la décroissance radioactive du Fe⁵⁵.

Le traitement quantitatif a été réalisé sur les spectres bruts et sur les spectres acquis avec le même Live time et le même real time. Le tableau 4 récapitule les caractéristiques d'acquisition des spectres et le tableau 5 les valeurs issues du traitement quantitatif.

| Spectre | Temps actif (live time) (s) | Temps réel (real time) (s) | Temps mort % | Nb de coups cps.s-1 |
|---------|-----------------------------------|----------------------------------|-----------------|------------------------|
| A | 100 | 188 | 45 | 3500 |
| B | 275 | 500 | 45 | 3500 |
| E | 100 | 500 | 80 | - |

Spectre E : Spectre 'spontané'

Spectre A : Spectre à étudier acquis avec le même Live time que le spectre spontané

Spectre B : Spectre à étudier acquis avec le même Real time que le spectre spontané

Tableau 4

Caractéristiques d'acquisition des spectres

| | Cr | Mn | Mo | Ni | Fe |
|--|-----|-----|-----|-----|------|
| Spectre A | 0,4 | 1,6 | 0,2 | 1 | 96,8 |
| Spectre B | 0,4 | 1,8 | 0,6 | 0,8 | 96,4 |
| Spectre C | 0 | 0 | 0 | 0 | 100 |
| Spectre D | 0,4 | 1,4 | 0,6 | 0,8 | 96,8 |
| Composition chimique connue par ailleurs | 0,2 | 1,5 | 0,5 | 0,7 | 97,1 |

Spectre C = Spectre A - Spectre E

Spectre D = Spectre B - Spectre E

Tableau 5
Résultats semi-quantitatifs

On constate que la soustraction du spectre spontané au spectre à étudier acquis avec le même Live time conduit à la disparition du pic du Mn; la même soustraction faite avec le même Real time conduit à des résultats satisfaisants.

Travailler directement sur le spectre brut n'est pas possible, puisque la concentration en Mn augmente avec le temps d'acquisition du fait de la contribution apportée par la décroissance du Fe^{55} .

IV-2-6 Limitation de l'analyseur et améliorations

Un système d'analyse E.D.S peut être fortement perturbé par l'activité d'un échantillon radioactif. On a introduit dans le microscope des sources de Co^{57} (1,7 mCi), de Cs^{137} (5,4mCi) et de Co^{60} (10mCi) pour obtenir la saturation de la diode sans faisceau électronique. Il n'y a pas eu de saturation, même avec la source de 10 mCi ; le temps mort était de 93% et 7500 cps détectés avec une distance de travail de 48 mm et la diode à 48 mm de l'axe du faisceau en position horizontale. On peut donc travailler avec cette activité, la diode n'est pas saturée.

L'amélioration de notre système d'analyse passe par la modification du détecteur, plus précisément le mode de décharge de la capacité du P.A, en adaptant un dispositif à contre réaction pulsée par transistor. Ce système est commercialisé par la société LINK sous le nom de "Pentafet". Dans un tel système la décharge de la capacité du P.A se fait par un transistor ce qui permet de diminuer le temps de décharge et à terme de diminuer le temps mort. Si l'on se réfère aux travaux de G.WHITE [3], le "Pentafet" et son électronique associée permettent de gagner du temps sur les rejets d'empilements.

Nous venons de transformer notre détecteur, et une étude en cours permettra de déterminer le gain réel amené par cette modification.

V- CONCLUSION

La microscopie électronique, à balayage ou en transmission, fait partie des moyens modernes d'investigation. L'utilisation en cellule blindée pour l'observation d'échantillons radioactifs nécessite une modification de ces appareillages. C'est ce qui a été réalisé sur notre microscope à balayage.

La préparation des échantillons, par microcarottage pour le M.E.B ou par polissage mécanique, électrochimique ou amincissement ionique pour les lames minces du M.E.T, nécessite aussi une adaptation pour le travail sur échantillons radioactifs.

Les analyses qualitative et quantitative par spectrométrie dispersive en énergie, qui est de plus en plus associée à ces microscopes, sont perturbées par l'activité émise par les échantillons. Des résultats quantitatifs peuvent être fournis à condition d'adapter la procédure, comme par exemple, faire la calibration de la chaîne de mesure en présence de l'échantillon radioactif.

Références :

[1] Contact 1 and 2 :

Experiment : Behavior of PWR rods
up to 15 000 MWd/t

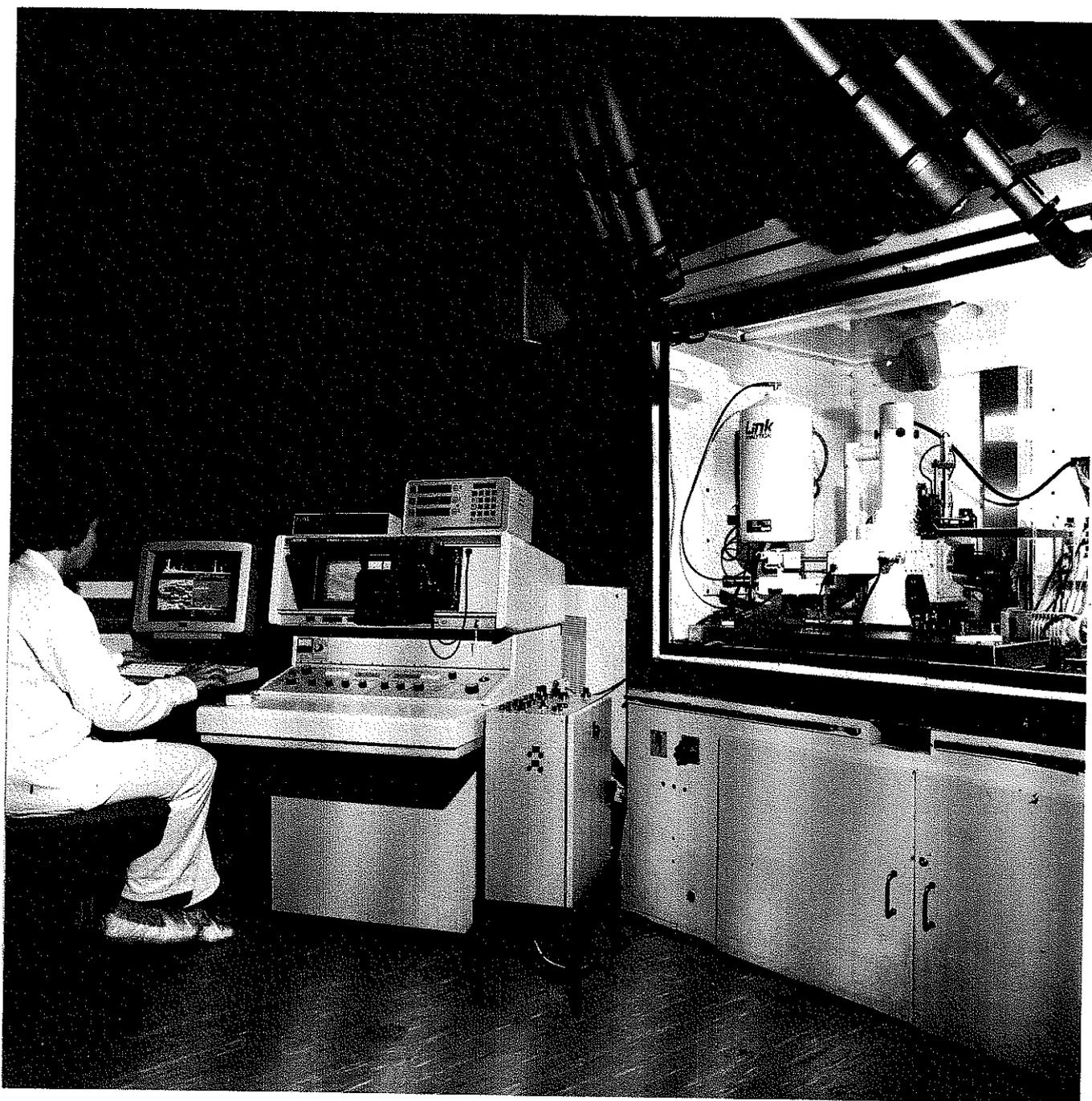
M. Bruet - J. Dodelier - P. Melun - M.C. Pointud
AIEA - Specialist Meeting - March 1980.

[2] Contribution à l'étude de l'influence du rayonnement
Gamma sur une diode Si/Li

G.EMINET
Note Technique n°55/90

[3] Low noise FET with integrated charge restoration for radiation
detector

T.NASHASHIBI and G.WHITE
IEEE San-Fransisco / Jan 1990



MICROSCOPE ELECTRONIQUE A BALAYAGE INSTALLE EN ENCEINTE BLINDEE

Fig. 1

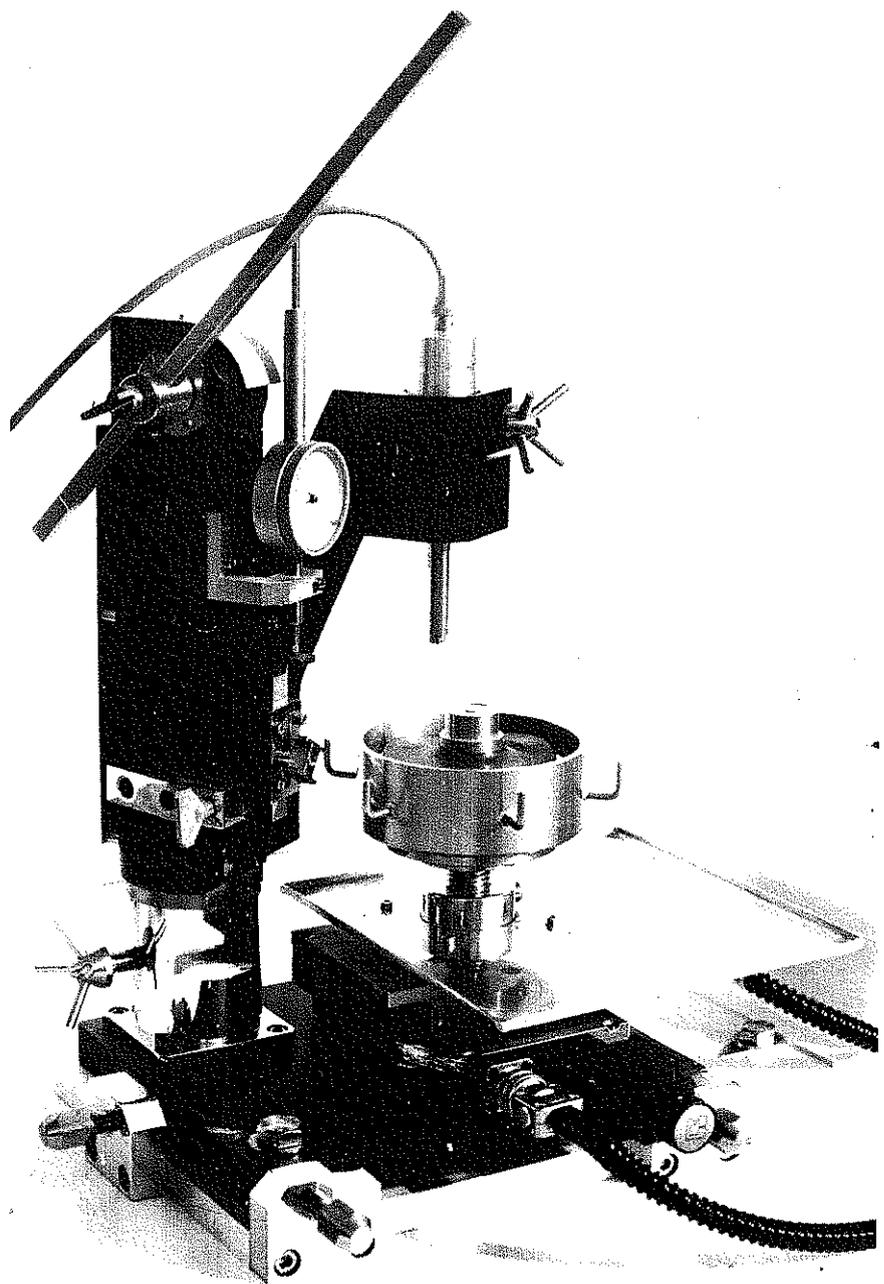
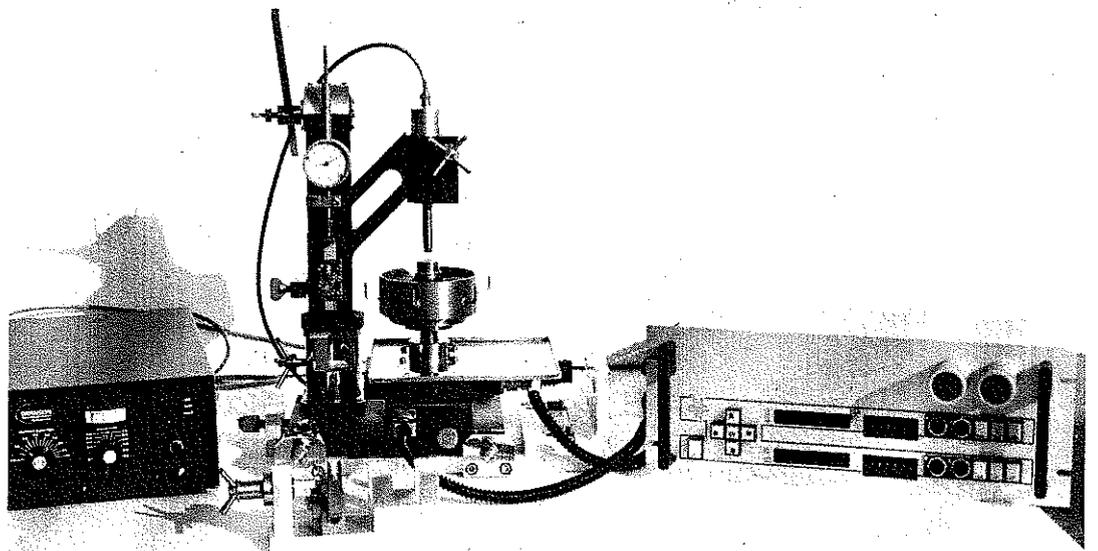


Fig .2: Vues d'ensemble de la microcarotteuse

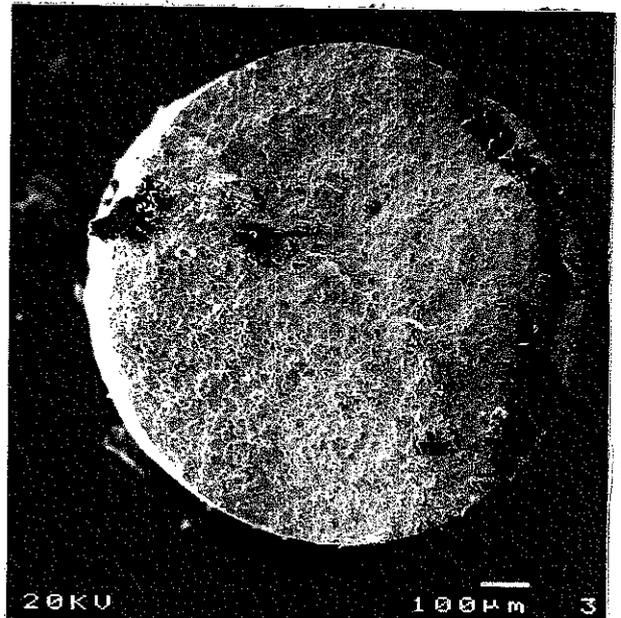
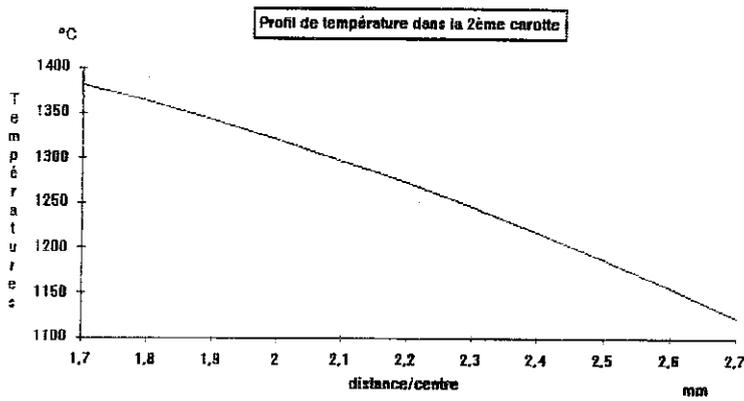
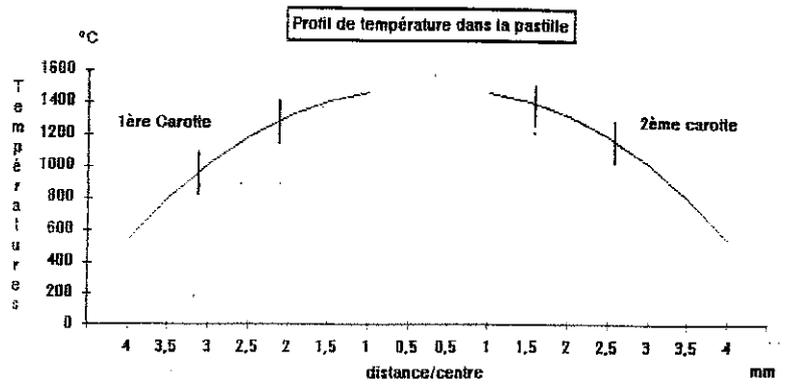
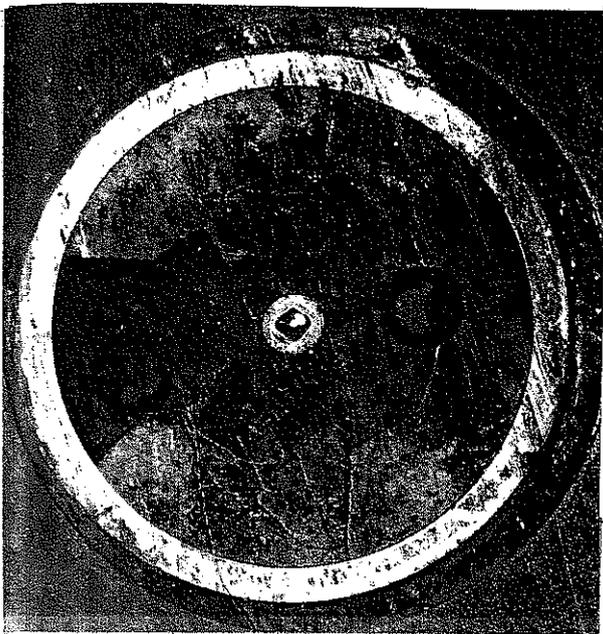
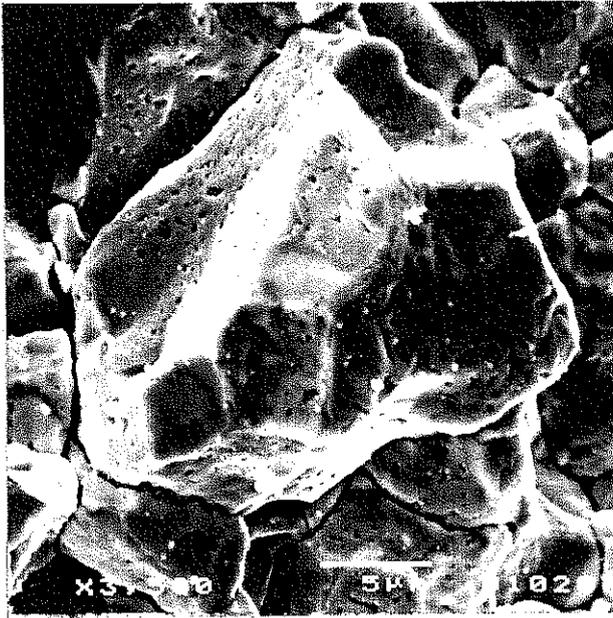


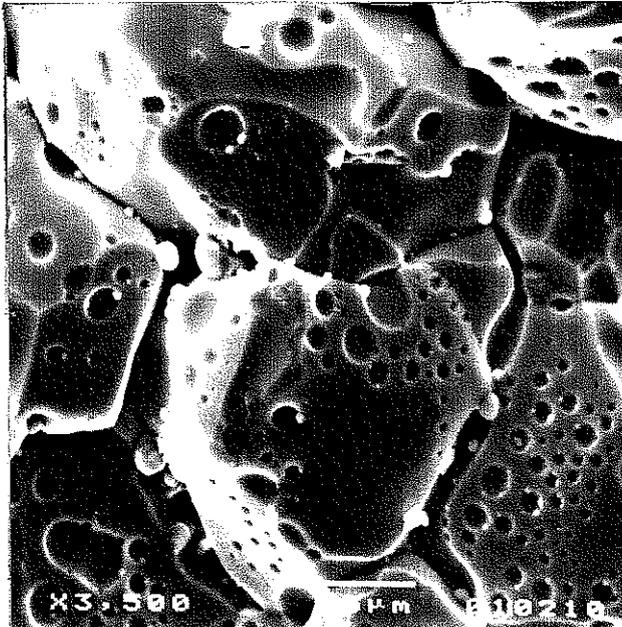
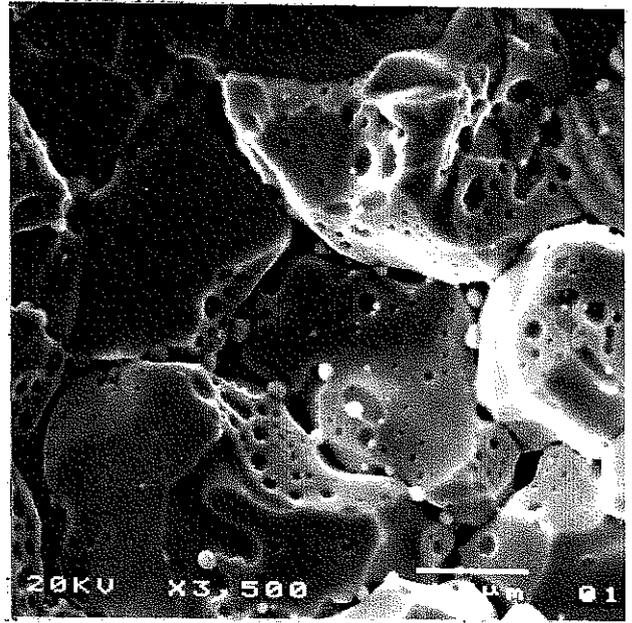
Fig.3 : Expérience Contact 1

Microcarottages et profils de température



T = 1120°C

T = 1270°C



T=1370°C

5 μm →

Fig.4 : Expérience Contact 1

2ème carotte - Evolution du faciès des joints de grains en fonction de la température



Fig.5 : Microscope Electronique à Transmission

ELABORATION DE LAMES MINCES PAR AMINCISSEMENT IONIQUE



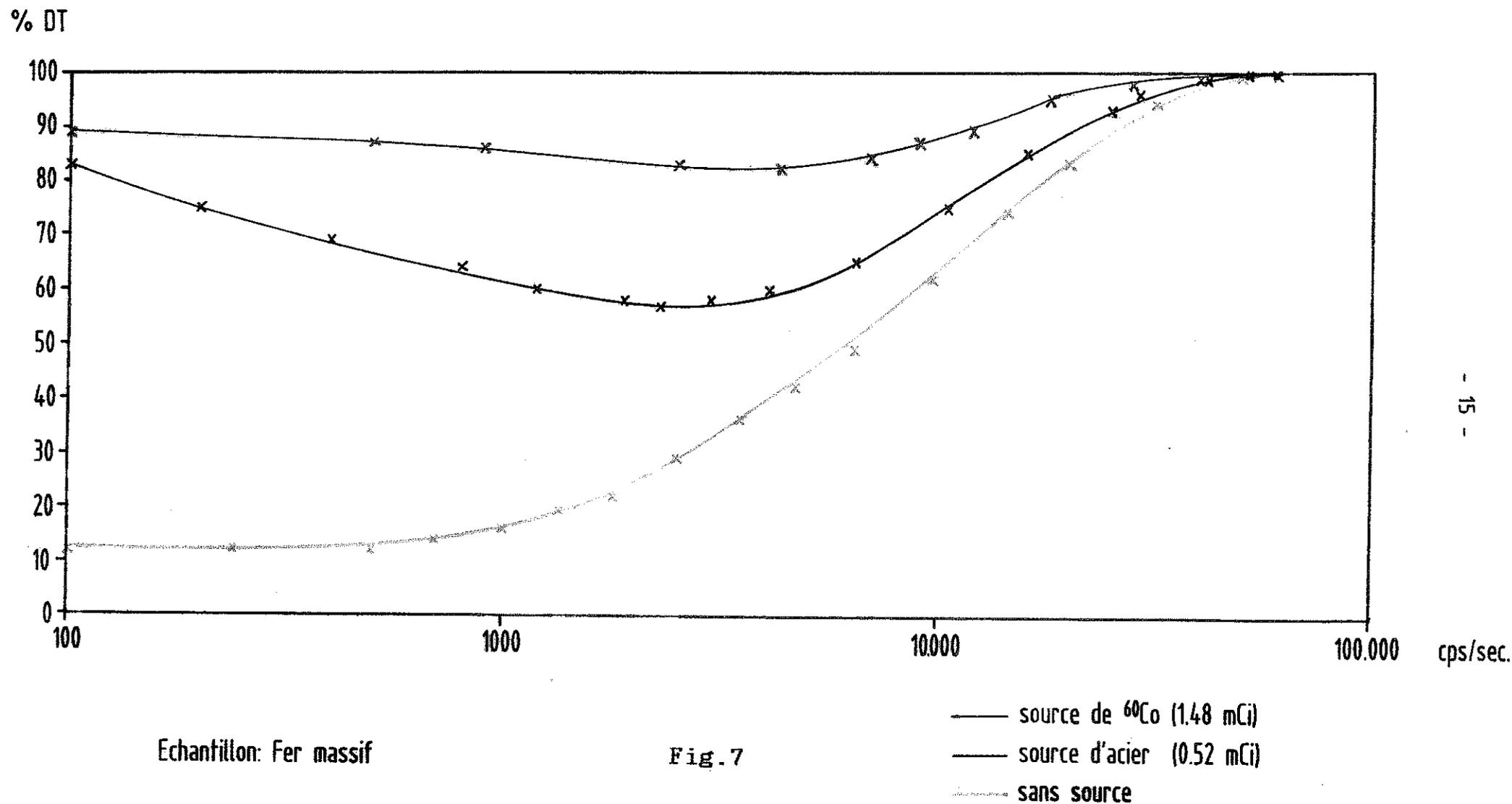
Amincisseur Ionique



Lame mince d' UO_2 .Epaisseur $\approx 80\mu\text{m}$

Fig.6

EVOLUTION DU TEMPS MORT EN FONCTION DU COURANT DE FAISCEAU
 AVEC ET SANS SOURCE RADIOACTIVE



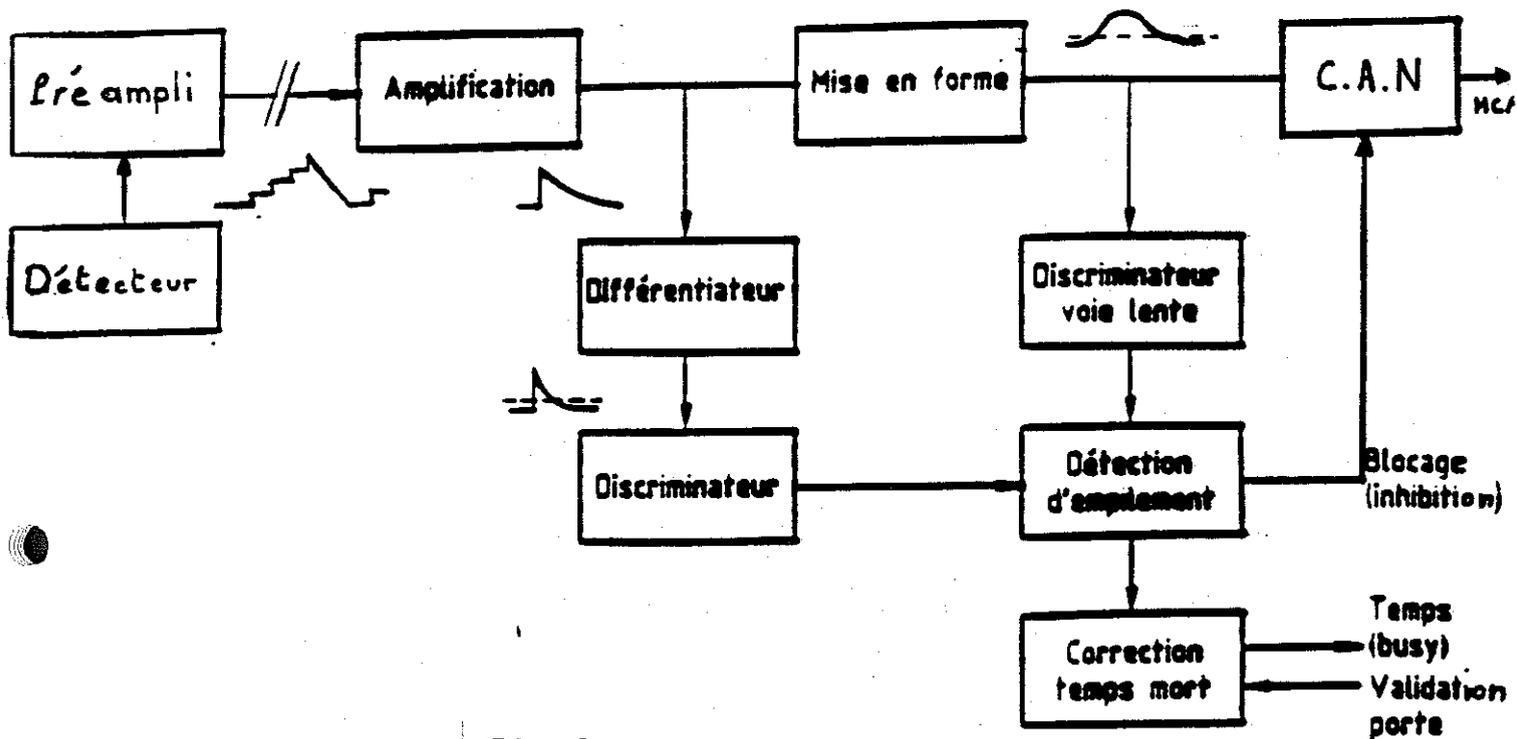


Fig. 8 CHAINE D'ANALYSE

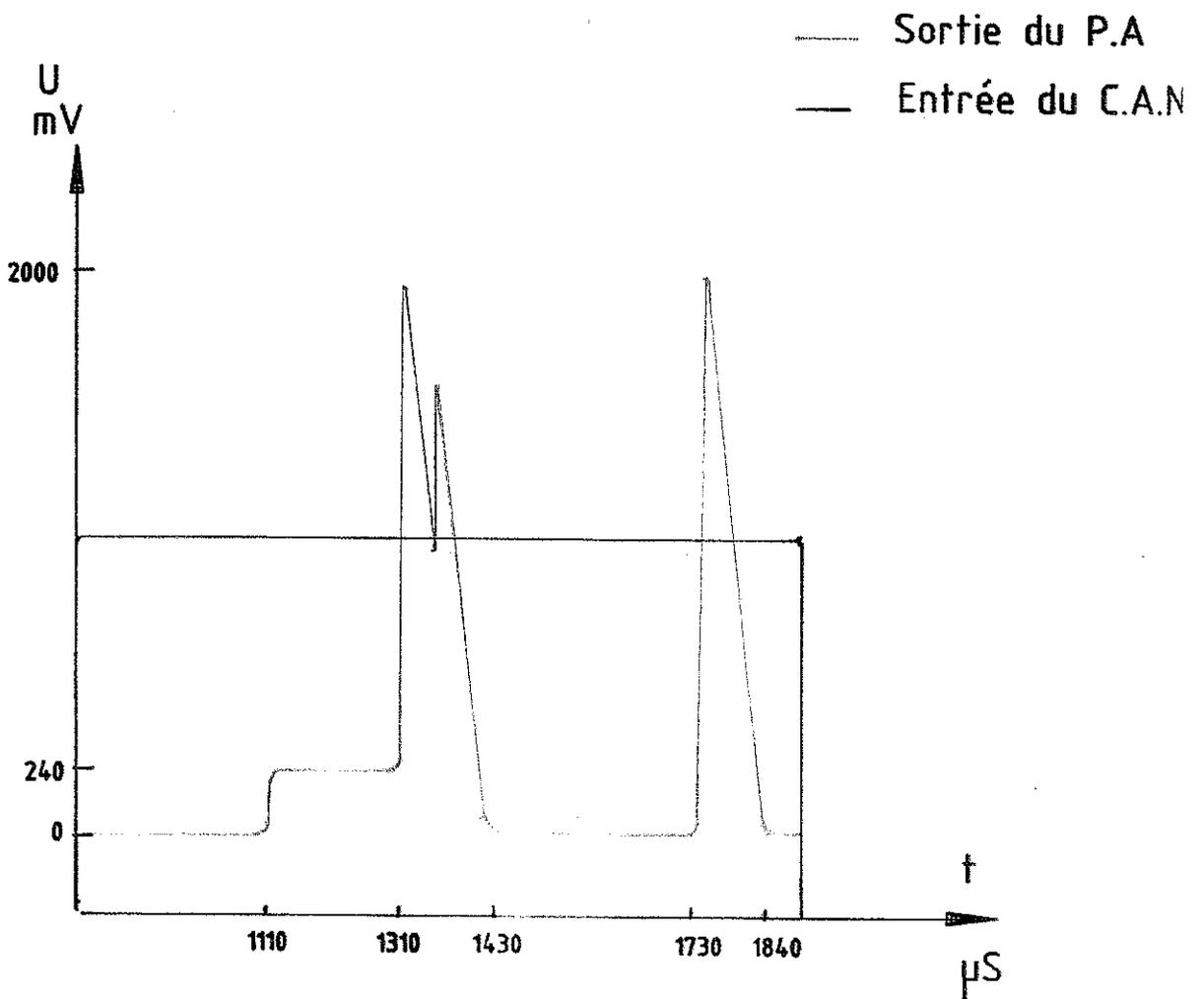


Fig.9

Impulsions 'Gammas' non codées

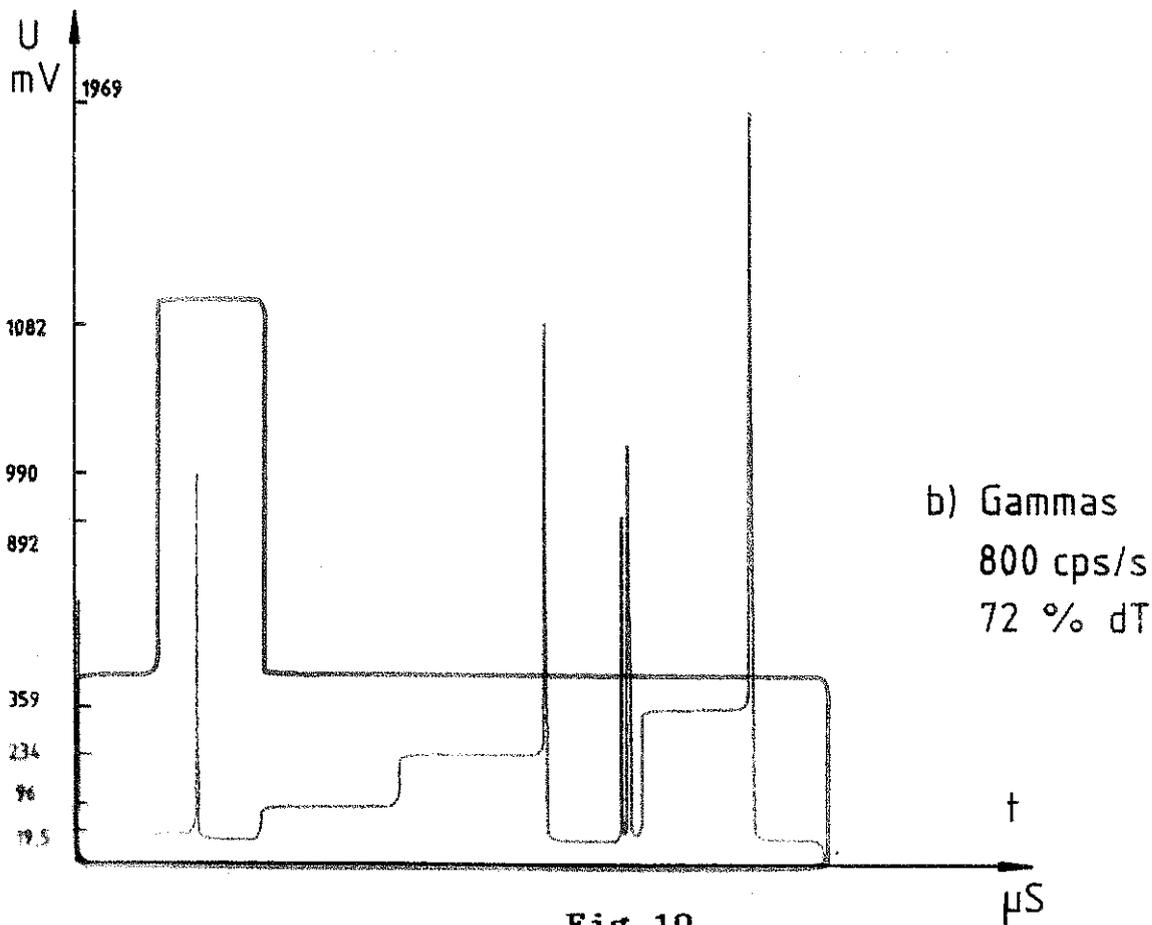
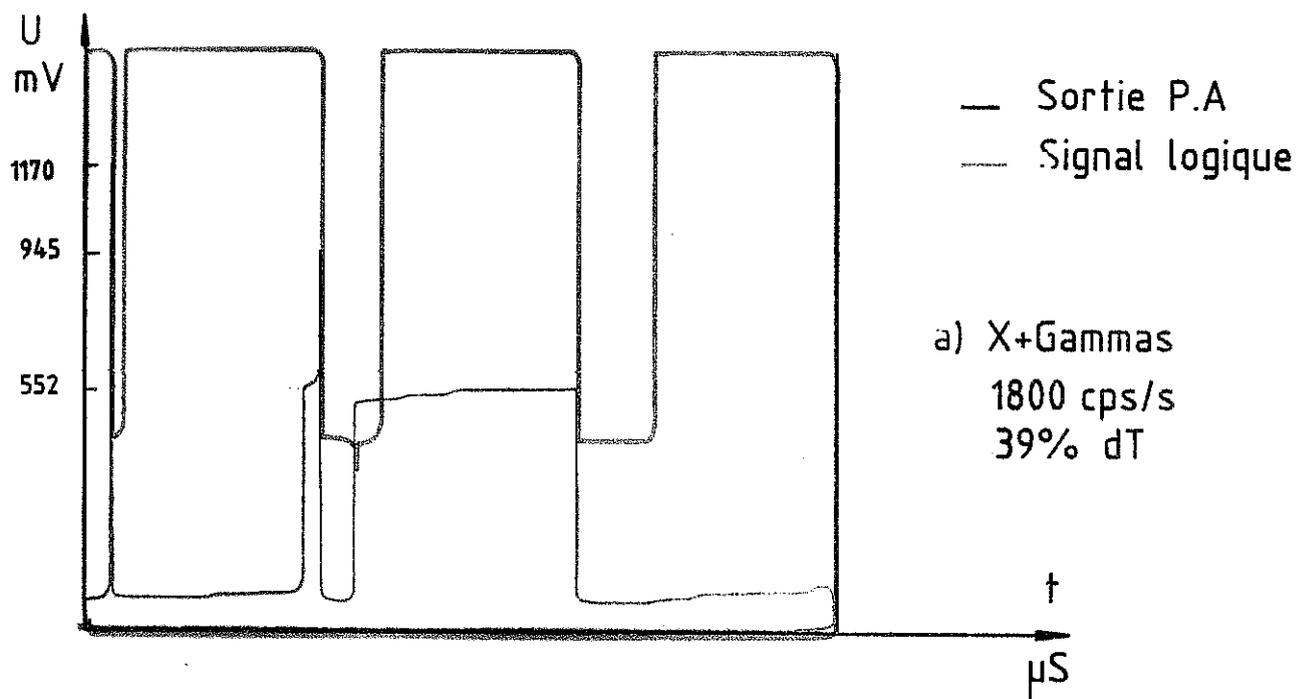


Fig.10

Variation du signal logique 2 (IC18-pin2) en cours de comptage sur un échantillon radioactif

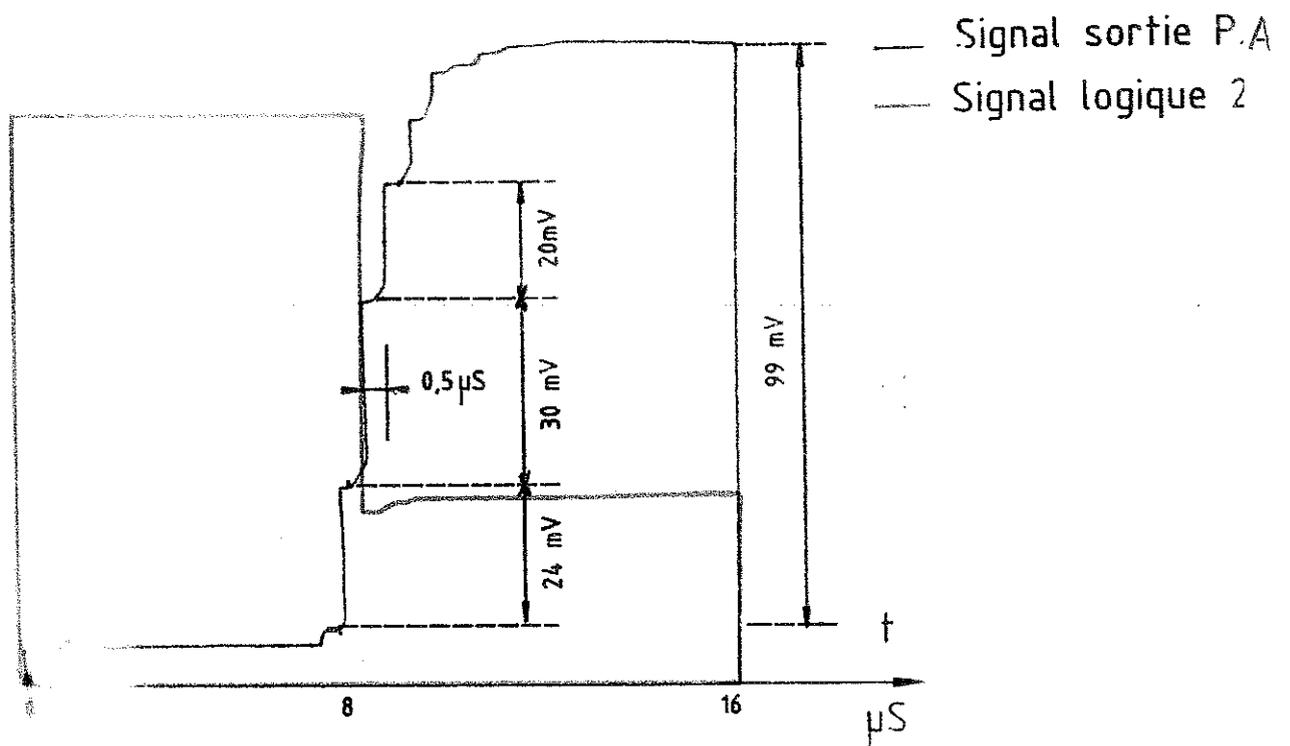
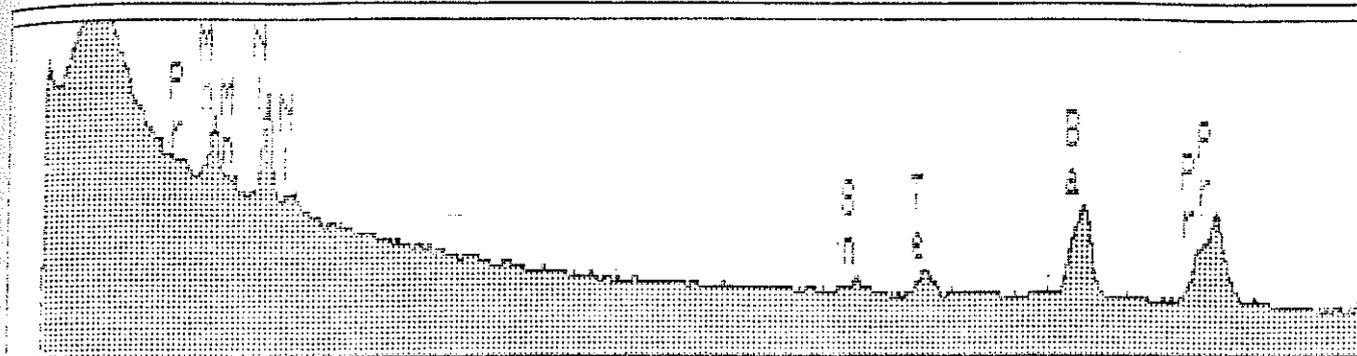
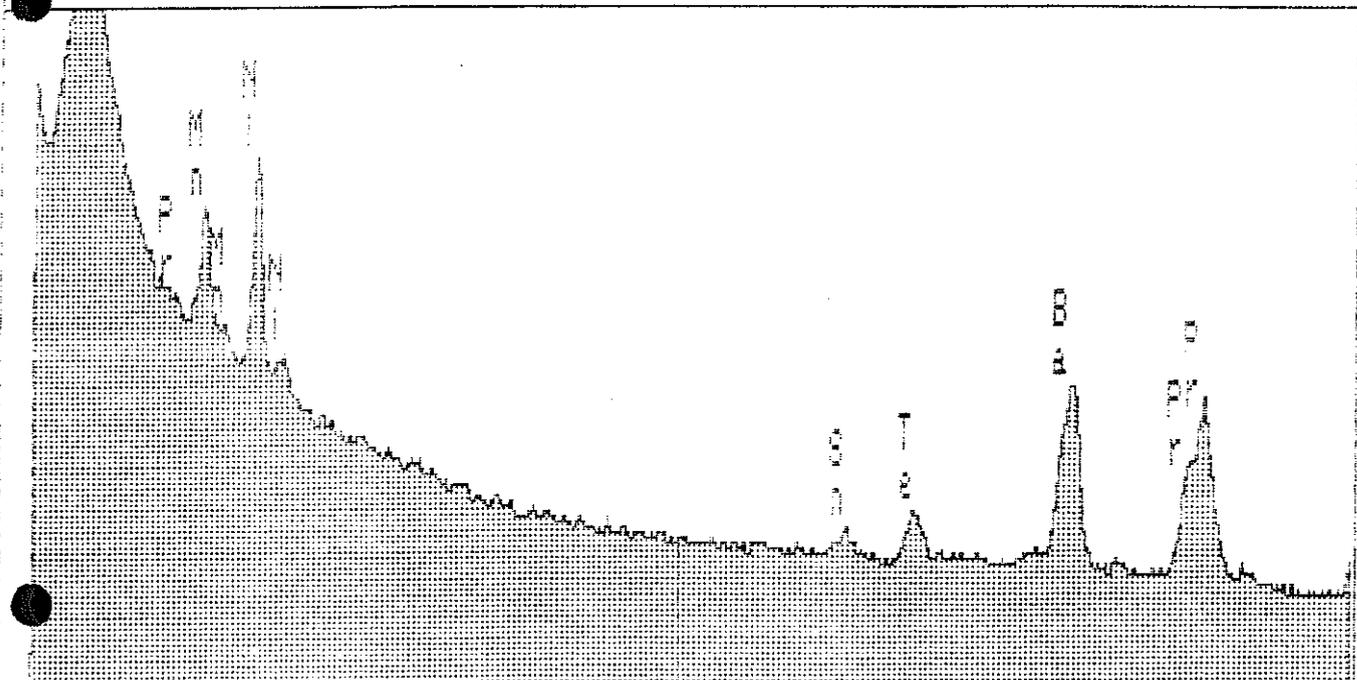


Fig.11 : Variation du signal logique 2
 Rejet d'empilement



X-RAY: 0 - 40 keV
 Live: 100s Preset: 100s Remaining: 0s
 Real: 1774s 94% Dead



< - .3 20.200 keV
 FS= 2K ch 515= 440 cts
 MEM1:UNI SANX 'X' Z=20 X=40

Fig.12

Spectre spontané émis par un échantillon radioactif (UNi)