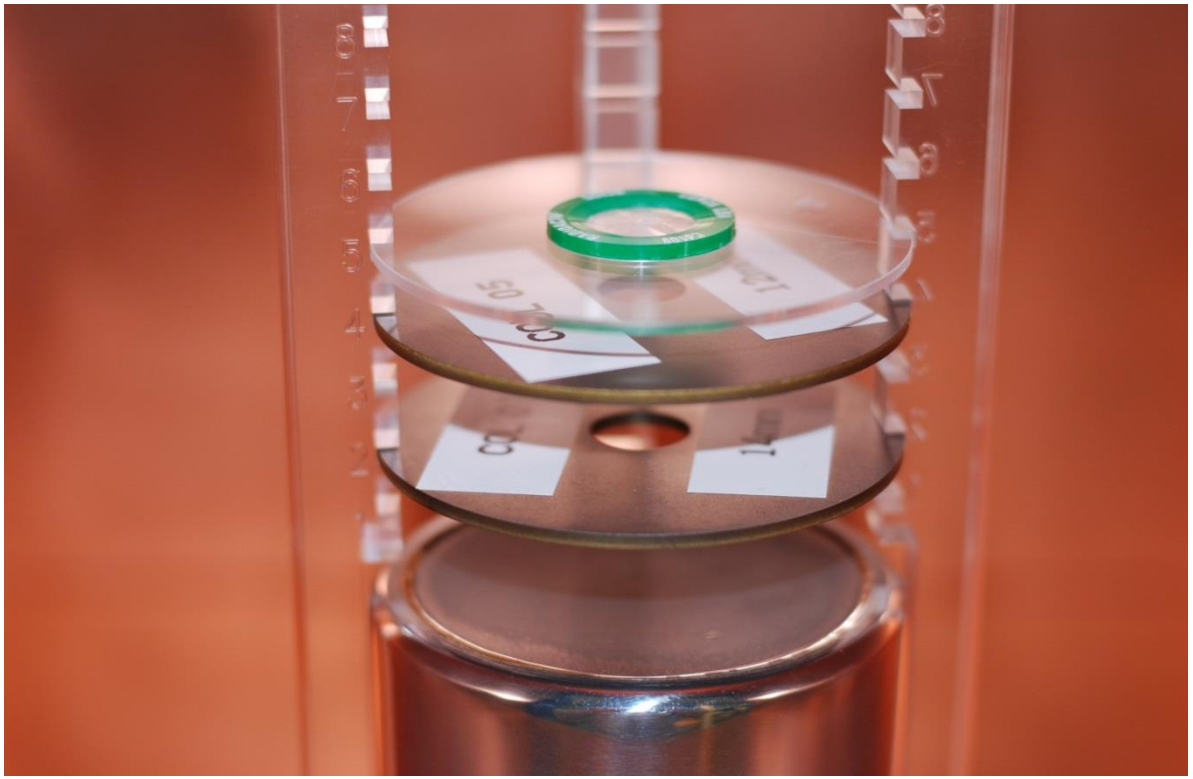
DE LA RECHERCHE À L'INDUSTRIE

Dosimétrie des réacteurs : Mesures de dosimètres par spectrométrie gamma et X



www.cea.fr

JU LNHB 16-17 Mars 2017
Christophe DOMERGUE (DER/SPEx/LDCI)

SOMMAIRE

1 – La dosimétrie en réacteur

1.1 Objectifs et applications
1.2 Surveillance du vieillissement des aciers de cuve

2 – La mesure d'activité

2.1 La Plate-forme MADERE
2.2 Les dosimètres
2.3 Les réactions appropriées à la dosimétrie en réacteur

3 – Les besoins de la Plate-forme MADERE

3.1 Mesure par spectrométrie gamma
3.2 Mesure par spectrométrie X

4 – Conclusion et perspectives

1. LA DOSIMÉTRIE EN RÉACTEUR
1.1 OBJECTIF, PRINCIPE ET APPLICATION

- **Objectifs de la dosimétrie en réacteur :**
  - Déterminer des taux de réaction, spectres de neutron, flux et fluences neutroniques

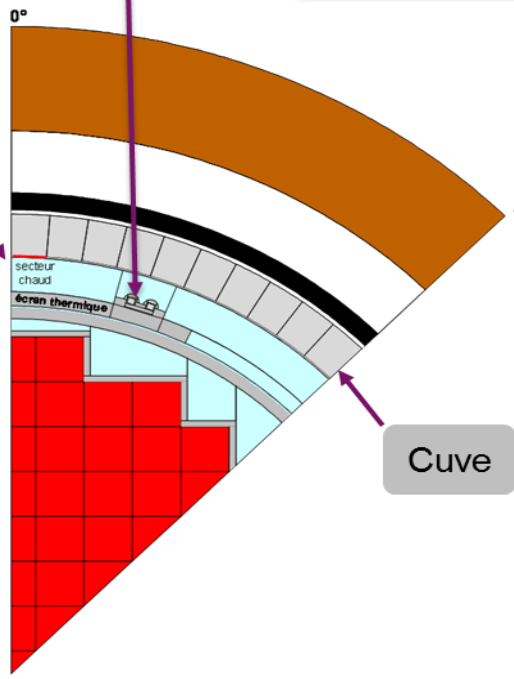
- **Principe de mesure :**
  - Sélection d'isotopes sensibles aux neutrons d'énergie variable : thermique [réactions (n,γ) (n,f)], rapide [réactions à seuil (n,n') (n,2n) (n,p) (n,α) (n,f)] ou épithermique
  - Irradiation de matériaux purs sous forme de fil, de disque ou de bande (de quelques μg à plusieurs g)
  - Mesure de l'activité du radionucléide créé, émettant des photons γ ou X

- **Interprétation de la mesure :**
  - Basique : comparaison calcul-mesure de l'activité du radionucléide
  - Approfondie : analyse du taux de réaction ou de la section efficace, conduisant à l'activité du radionucléide
  - Sophistiquée : utilisation de plusieurs dosimètres avec des seuils de réaction complémentaires

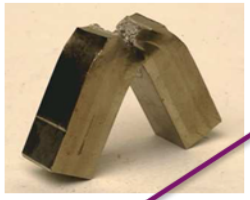
- **Applications :**
  - Réacteurs maquettes (EOLE, MINERVE) : caractérisation d'un spectre neutronique
  - Réacteurs d'irradiation (OSIRIS, RJH, …) : suivi du vieillissement des matériaux
  - Réacteurs de puissance (parc EDF) : suivi de la fragilisation de la cuve sous irradiation

1.2 SURVEILLANCE DU VIEILLISSEMENT DES ACIERS DE CUVE

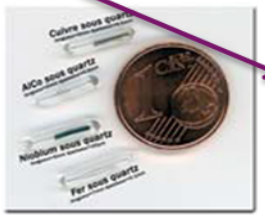
Point chaud de la cuve



Capsule → Irradiation



Tests sur éprouvettes mécaniques EDF → ΔRT_{ndt}



Dosimétrie CEA → $\Phi_{>1\,MeV}$

$$A = N.\sigma.\Phi.e^{-\lambda t}$$

$$\Delta_{RT_{ndt}} = f(\Phi_{>1\,MeV}, \text{impuretés})$$

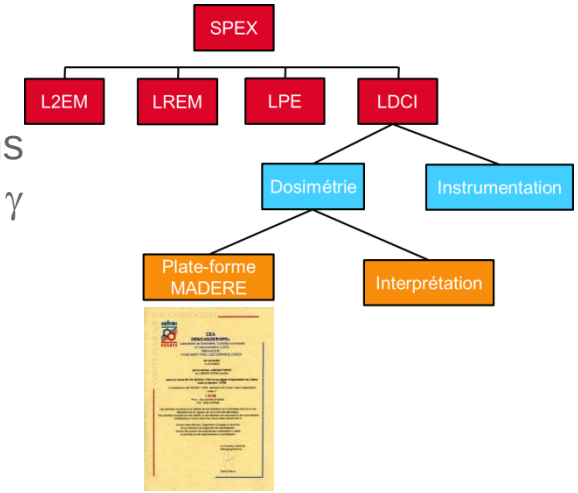
Cuve

Objectifs du PSI :

Vérifier la validité des formules de fragilisation (périodiquement pour chaque capsule)

Anticiper la fragilisation de la cuve (facteur d'anticipation)

2. LA MESURE D'ACTIVITÉ
2.1 LA PLATE-FORME MADERE



Activités

- Mesures d'activité massique (Bq/mg) sur des échantillons **solides** irradiés en réacteur par spectrométrie X et γ (Accréditation COFRAC essais depuis1996).

Equipements de mesures

- 3 Chaines de mesures gamma « Standard »
- 2 Chaines de mesures gamma faibles activités
- 2 Chaines de mesures X
- 2 Balances de précisions

2.2 LES DOSIMÈTRES

Réacteurs d'irradiation

cuivre

Diamètre : 0,1 mm

Longueur : 5 mm

niobium

10 mm

REP

Activation
(Ø 1 mm x L 10 mm)

Cobalt (AlCo)

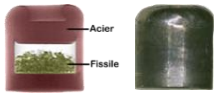
Niobium

Nickel

Fer

Cuivre

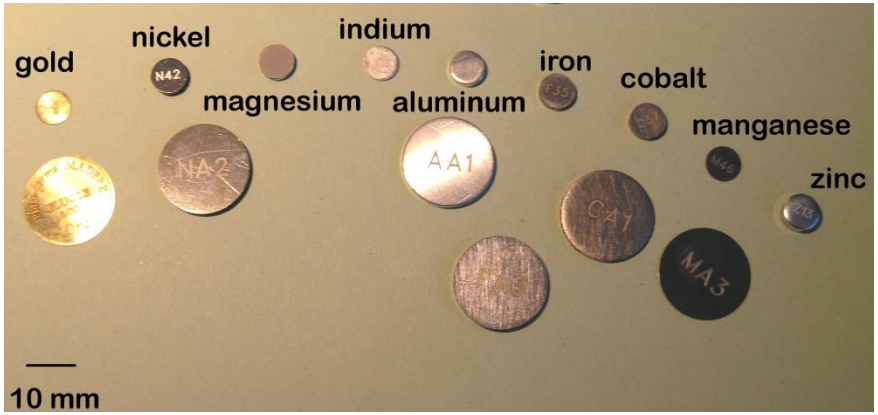
Fissiles
(Ø 4,6 mm x H 5,0 mm)

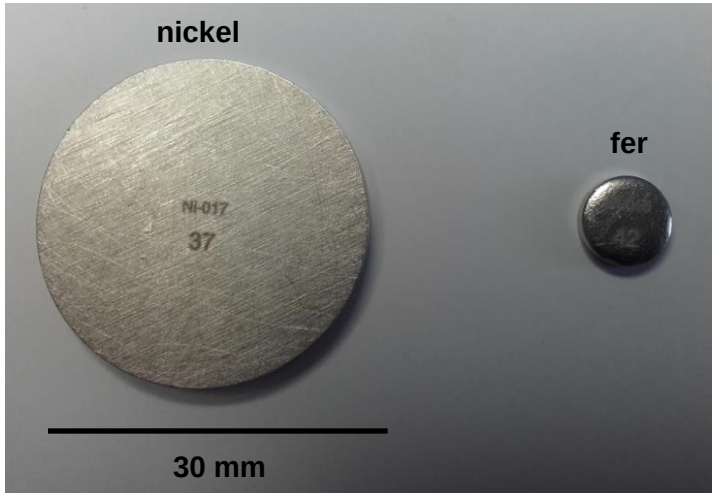


Uranium

Neptunium

Réacteurs maquettes





2.3 RÉACTIONS APPROPRIÉES À LA DOSIMÉTRIE EN RÉACTEUR

Φ < 1MeV		
Réaction	**Réponse**	**Période**
$^{197}Au(n,\gamma)^{198}Au$	Th + epi	2,69 j
$^{59}Co(n,\gamma)^{60}Co$	Th + epi	5,27 a
$^{55}Mn(n,\gamma)^{56}Mn$	Th + epi	2,58 h
$^{115}In(n,\gamma)^{116}In^{m}$	Th + epi	54,60 mn

Φ > 1MeV		
Réaction	**Réponse**	**Période**
$^{58}Ni(n,p)^{58}Co$	E >2,7 MeV	70,86 j
$^{64}Zn(n,p)^{64}Cu$	E >2,8 MeV	12,70 h
$^{54}Fe(n,p)^{54}Mn$	E >3,0 MeV	312,13 j
$^{46}Ti(n,p)^{46}Sc$	E >4,4 MeV	83,787 j
$^{24}Mg(n,p)^{24}Na$	E >6,1 MeV	14,96 h
$^{63}Cu(n,\alpha)^{60}Co$	E >6,8 MeV	5,27 a
$^{27}Al(n,\alpha)^{24}Na$	E >7,3 MeV	14,96 h
$^{51}V(n,\alpha)^{48}Sc$	E >11,0 MeV	1,82 j

Φ ~ 1MeV		
Réaction	**Réponse**	**Période**
$^{117}Sn(n,n')^{117m}Sn$	E >0,36 MeV	14,0 j
$^{237}Np(n,f)^{137}Cs$	E >0,6 MeV	30,04 a
$^{103}Rh(n,n')^{103m}Rh$	E >0,7 MeV	56,11 mn
$^{93}Nb(n,n')^{93m}Nb$	E >1,2 MeV	16,12 a
$^{115}In(n,n')^{115m}In$	E >1,3 MeV	4,49 h
$^{238}U(n,f)^{137}Cs$	E >1,5 MeV	30,04 a

- Spectre neutronique mal maitrisé par le calcul dans ce domaine énergétique
- Difficultés de mesures par spectrométrie gamma et X sur certains radionucléides (données nucléaires, facteurs correctifs, …)

Améliorer la mesure / Collaboration LNHB

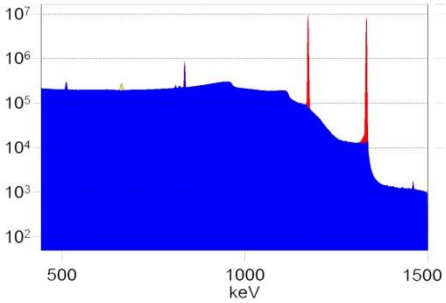
3 BESOINS DE LA PLATE-FORME MADERE
3.1 MESURES PAR SPECTROMÉTRIE GAMMA

- Activité du Cs-137 d'un dosimètre fissile contenu dans un boitier inox irradié dans un REP EDF

$$\mathcal{A}_i = \frac{S_i}{t.\varepsilon_{(Ei)}.I_\gamma}.C_{déc}.C_{fin\ irrad}.C_{coin}.C_{auto\ abs}.C_{abs.boitier}C_{géo}.C_{cobalt}$$

Dosimètres fissiles

- Contraintes
  - Dosimètre de Np-237 et U-238 irradié en REP (entre 4 et 30 ans)
  - Forte activité en Co-60→ Géométrie de comptage éloignée
  - Prise en compte de l'épaisseur des boitiers inox



- Amélioration nécessaire
  - C_{cobalt} : prise en compte du pic de simple échappement qui perturbe la mesure de Cs-137

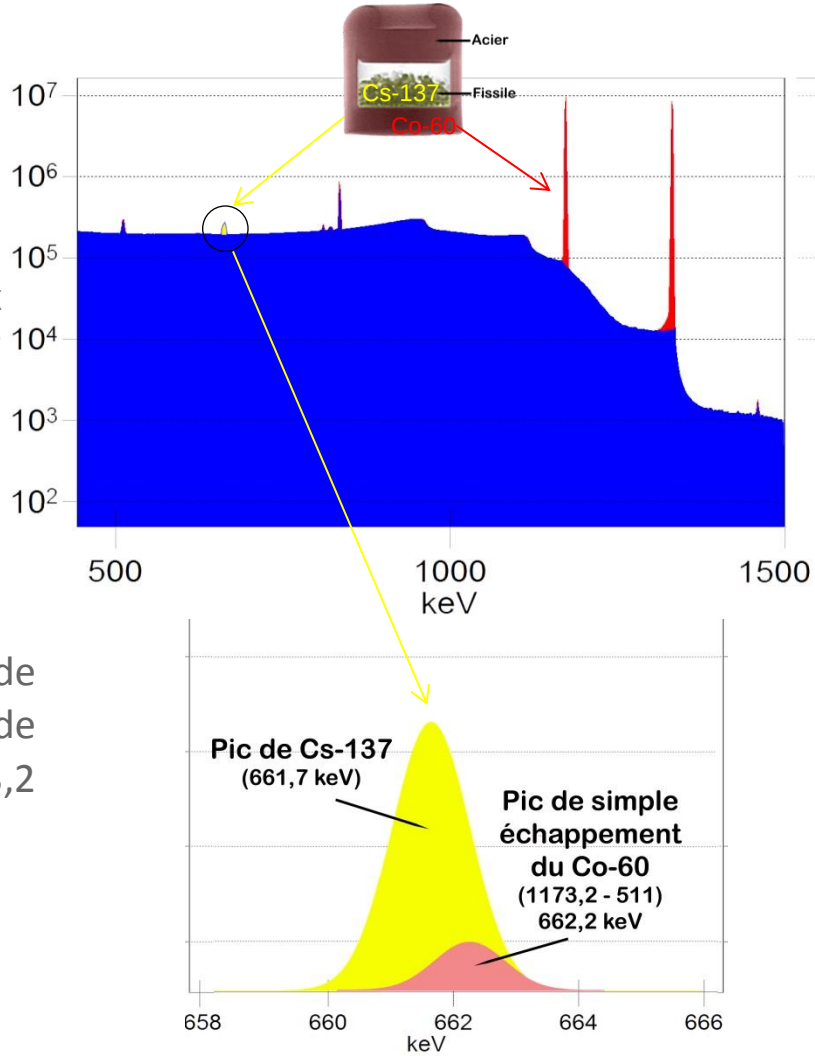
3.1 MESURES PAR SPECTROMÉTRIE GAMMA

- **Besoin**
  - Mesurer le pic 661,7 keV du Cs-137 créé dans le dosimètre fissile

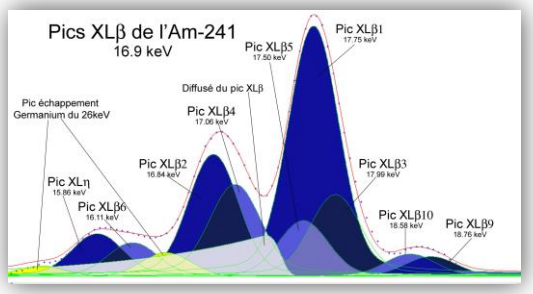
- **Problème**
  - Création de Co-60 à partir du boitier inox (enveloppe du dosimètre) qui perturbe la raie 661,7 keV du Cs-137 par la raie de simple échappement du 1173,2 keV du Co-60 (1173,2-511 = 662,2 keV
  - **Jusqu'à 12 % de perturbation selon centrale**

- **Travail réalisé**
  - Détermination d'un facteur correctif permettant de remonter à la surface vraie du Cs-137 corrigé de l'influence du simple échappement de la raie 1173,2 du Co-60
  - Déconvolution précise avec COLEGRAM
  - Etude spécifique - NT/LNHB/JP/CL/03-32 de 2003
  - Facteur correctif estimé est de :

$$S_{661,7}=S_{ROI}-0,068\% \times S_{1173,2} \text{ à } 9,5\% \ (k=1)$$



3.2 MESURES PAR SPECTROMÉTRIE X



- Activité massique du Nb-93m ou du Rh-103m

$$A_{(XK)} = \frac{S_{(K)}}{t.\varepsilon_{(X_K)}.I_{(X_K)}}.C_{déc}.C_{fin\ irrad}.C_{coin(X_K)}.C_{auto\ att(X_K)}.C_{géo}.C_{Mylar(X_K)}.C_{fluo}$$

- Contraintes
  - Intensités d'émissions mal connu (entre 5% et 7 % pour le Rh-103m)
  - Energie des photons faibles (entre 16 keV et 22 keV) → $C_{auto\ att}$ importante (entre 20 et 50 %)
  - Phénomène de fluorescence induite par les rayonnements γ
  - Utilisation d'un logiciel de traitement spécifique (COLEGRAM) pour la déconvolution des pics

- Améliorations nécessaires
  - Intensités d'émissions du Nb-93m et du Rh103m
  - Maitrise et amélioration des incertitudes des $C_{auto\text{-}att}$
  - Détermination et validation des corrections de Fluorescence

Co-encadrement thèse LDCI/LNHB – J. Riffaud

3.2.1 AMÉLIORATION DES INTENSITÉS D'ÉMISSION

- **Etat des lieux**
  - Nb-93m (réévalué le 04/10/2013→ écart de -5 %) :
    - $E_{XK\alpha}$: 16,6 keV; $I_{XK\alpha}$: 0,0966 ± 1,8 %
    - $E_{XK\beta}$: 18,7 keV ; I_{XKb} : 0,01886 ± 2,2 %
  - Rh-103m (en cours) :
    - $E_{XK\alpha}$: 20,1 keV; $I_{XK\alpha}$: 0,0966 ± 5,4 %
    - $E_{XK\beta}$: 22,9 keV ; I_{XKb} : 0,0189 ± 7,0 %

5 Photon Emissions

5.1 X-Ray Emissions

		Energy (keV)	Photons (per 100 disint.)	
XL	(Nb)	1,9 - 2,67	2,88 (6)	
$XK\alpha_2$	(Nb)	16,5213	3,32 (8)	Kα
$XK\alpha_1$	(Nb)	16,6152	6,34 (15)	Kα
$XK\beta_3$	(Nb)	18,607	1,64 (4)	$K'\beta_1$
$XK\beta_1$	(Nb)	18,623		$K'\beta_1$
$XK\beta_5''$	(Nb)	18,78		$K'\beta_1$
$XK\beta_2$	(Nb)	18,952	0,246 (11)	$K'\beta_2$
$XK\beta_4$	(Nb)	18,982		$K'\beta_2$

- **Travail réalisé**
  - Campagne de mesure sur le synchrotron SOLEIL → Rendements de fluorescence ω du Nb et Rh
  - Irradiation dans ISIS de dosimètre Rhodium pur + RhCl3→ Ix du Rh-103m (Scintillation liquide + Spectrométrie X)

- **Résultats**
  - ω de fluorescence du Rh et du Nb → présenté par J. RIFFAUD
  - Intensités d'émission du Rh-103m → en cours de traitement

- **Publications**
  - European Conference on X-Ray Spectrometry –Suede - EXRS2016
  - International Comitee for Radionuclide Metrology – Argentine - ICRM 2017

3.2.2 AMÉLIORATION DE LA CORRECTION D'AUTO-ATTÉNUATION

Besoin

- Valider les corrections d'auto-atténuation avec leurs incertitudes associées pour les énergies X_K du Nb-93m et Rh-103m sur les échantillons métalliques.

Travail réalisé

- Caractérisation expérimentale des coefficients d'atténuation massiques μ/ρ (SOLEIL en 2015)
- Mesure précise des épaisseurs des échantillons de rhodium (50 µm) et Niobium (20 µm)
- Etude de 3 méthodes pour caractériser C_{auto} (analytique, ETNA et simulation Monte Carlo)

Résultats

			Travail actuel	Anciennes valeurs	Ecarts
$C_{auto\text{-}attenuation}$	Nb-93m (20µm)	16.6 keV	1,184 (35)	1,173	0.9 %
		18.7 keV	1,128 (34)	-	
	Rh-103m (50µm)	20.1 keV	1,572 (47)	1,543 (31)	1.9 %
		22.9 keV	1,390 (42)	1,394 (28)	-0.3 %

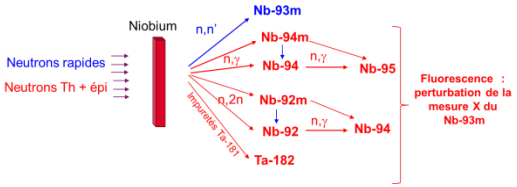
Conclusion

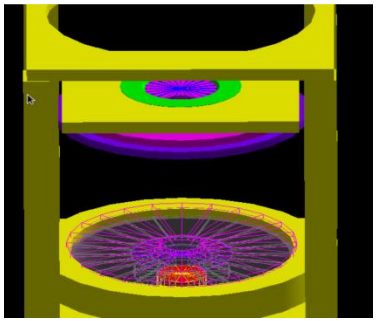
- Résultats cohérents
- Incertitude de l'ordre de 3 %

3.2.3 DÉTERMINATION DES CORRECTIONS DE FLUORESCENCE

Etat des lieux

- Sous un flux mixte → Création de radionucléides émetteurs γ qui en interagissant avec le dosimètre lui-même vont créer un phénomène de fluorescence.
- Conséquence : mesure de Nb-93m qui ne provient pas de la réaction (n,n').
- Coefficient de correction déterminé en 1972
- Impact : jusqu'à 7 % (Ta-182) de correction selon le flux de neutron





Travail réalisé

- Estimation par Simulation Geant4 des coefficients de correction de fluorescence sur les radionucléides : Ta-182, Nb-95, Nb-92m, Nb-94 et Co-60

Résultats

		Travail actuel	Valeurs 1972	Ecarts
C_{Fluo}	Nb-92m	0,00067 (4)	0,021	-99 %
	Nb-94	0,0119 (2)	0,0055	116 %
	Nb-95	0,00310 (6)	0,0033	-6,1 %
	Ta-182	0,0645 (6)	0,077	-16,2%
	Co-60	0,00821 (11)	-	-

3.2.3 DÉTERMINATION DES CORRECTIONS DE FLUORESCENCE

- Résultats
  - Les résultats du Nb-92m et du Nb-94 sont différents de ceux déterminés en 1972 → impact négligeable sur le résultat final.
  - Les résultats du Nb-95 et du Ta-182 sont cohérents → ~0,5 % d'écart sur le résultat final
  - Le Co-60 est à prendre en compte lors des prochaines mesures
  - Publication conférence ICRS13/IPSD 2016
  - Cette étude montre également la création Ta-185 émetteur béta pur qui pourrait avoir un impact sur le coefficient de correction de fluorescence→ en cours d'étude

4 CONCLUSION ET PERSPECTIVES

- **Plate-forme MADERE**
  - Laboratoire de référence pour la dosimétrie en réacteur en France
  - COFRAC depuis plus de 20 ans (1996)
  - La mesure par spectrométrie X (éch. solide) appliquée aux réacteurs est complexe et spécifique
  - Collaboration avec le LNHB permet d'améliorer la précision de nos résultats de mesures d'activité et participe donc à la validation des schémas de calcul neutronique des réacteurs
  - Les calculs neutroniques sont de plus en plus précis → Nécessité réévaluer certaines données nucléaires (Intensité d'émission) pour améliorer les incertitudes mesures.

- **Avancées de la thèse**
  - Détermination de nouveaux facteurs correctifs de Fluorescence
  - Amélioration des données nucléaires du Rh-103m et Nb-93m (Ix du Rh-103m+ ω)
  - Amélioration et validation des facteurs de corrections d'auto-atténuation
  - Avancées importantes pour la mesure par spectrométrie X

- **Besoins non couvert**
  - Sn-117m
  - Mesures dans le domaine neutronique épithermique

- **Un Round Robin doit être réalisé sur la mesure par spectrométrie X et γ en 2017 avec la participation du LNHB.**