

00 ite

DEMANDE D'AUTORISATION N° EN VUE D'UNE PUBLICATION OU D'



TIO

Direction : DRN
Centre : CADARACHE
Réf émetteur : DER/DIR / PUB.94/010.

95001804

Titre original du document : MESURE DE CONCENTRATION EN MATIERE FISSILE DANS LES LIQUIDES PAR INTERROGATION NEUTRONIQUE ACTIVE

Titre traduit en anglais :

Titre traduit en français : OM 648 IN. FR-9701488

AUTEURS	AFFILIATION ¹	DEPT/SERV/SECT	VISA (d'un des auteurs)	DATE
RONEYER-DHERBEEY	CEA	DER/SSAE/DIR	9100987FR	19/11/93
PASSARD	"	"		
COUG	"	"		
SIGNAN	"	"		

Nature du document² :

PERIODIQUE
 CONF/CONGRES
 POSTER
 RAPPORT
 THESE
 COURS
 MEMOIRE DE STAGE
 Chapitre d'OUVRAGE
 Pièces jointes : RESUME TEXTE

CONGRES
CONFERENCE

Nom : TOURNÉES TECHNIQUES "L'ANALYSE EN LIGNE"
Ville : ISTITTE Pays : Date du : 30/09/93 au ... / ... / ...
Organisateur : CETARA

PERIODIQUE

Titre :
Comité de lecture : oui non

DOMAINES :

LANGUE : F.
N° EPAC : 6.3.2.7
SUPPORT : Disquette Papier

OUVRAGE

Titre :
Éditeur :

THESE
MEMOIRE DE STAGE
COURS

Université / Établissement d'enseignement :

MOTS-CLES :

Les visas portés ci-dessous attestent que la qualité scientifique et technique de la publication proposée a été vérifiée et que la présente publication ne divulgue pas d'information brevetable, commercialement utilisable ou classée.

SIGLE	NOM	DATE	VISA	OBSERVATIONS	REF
-------	-----	------	------	--------------	-----

CHEF DE SERVICE	SSAE	L. MARTIN-DE-DIEZ	83/12/93		
CHEF DE DEPARTEMENT	DER/DIR	JR CHANDAT	9/2/94		

Jean-Paul CHAUDAT
 Chef du Département
 d'Etudes des Réacteurs

ARRIVEE

19 AVR. 95 00200

Circ. : CR: NCC

Date limite d'envoi du résumé : .../.../...

Date limite d'envoi du texte : .../.../... Date limite d'envoi du poster : .../.../...

Destinataires :

Les correspondants publication des départements se chargent de transmettre à l'INST/MIST/CIRST (Saclay) copies des demandes d'autorisation de publication, du résumé et du texte définitif.



COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE
CENTRE DE CADARACHE
13108 SAINT-PAUL-LEZ-DURANCE

TELEPHONE:42252847
TELEX:CENCA 440678F
TELECOPIE:42252367

DIRECTION DES REACTEURS NUCLEAIRES
DEPARTEMENT D'ETUDES DES REACTEURS
SERVICE DE SYSTEMES D'AIDE A L'EXPLOITATION

Référence: PU/SSAE/LDMN/93-015

publication

TITRE :

**MESURE DE CONCENTRATION EN MATIERE FISSILE DANS LES LIQUIDES
PAR INTERROGATION NEUTRONIQUE ACTIVE.**

AUTEURS : J. ROMEYER DHERBEY, Ch. PASSARD, J. CLOUE, G. BIGNAN

CONGRES

TITRE : JOURNEES TECHNIQUES. "L'ANALYSE NON DESTRUCTIVE"

ORGANISATEURS : CETAMA

DATE : 29-30 Septembre 1993

LIEU : C.E. de VALDUC

PAPIER PRESENTE PAR : J. ROMEYER DHERBEY .

orale :

poster :

REVUE

NOM :

REFERENCE :

	NOM	DATE	SIGNATURE
REDACTEUR :	J. ROMEYER DHERBEY		

MESURE DE CONCENTRATION EN MATIERE FISSILE DANS DES LIQUIDES PAR INTERROGATION NEUTRONIQUE ACTIVE

J. ROMEYER-DHERBEY, C. PASSARD, J. CLOUE, G. BIGNAN

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE (C.E.A.)

DRN/DER/SSAE

CE CADARACHE

13108 ST PAUL LEZ DURANCE

95001804 FR

RESUME

L'utilisation de l'interrogation neutronique active pour mesurer la concentration en matière fissile dans une solution en écoulement est particulièrement intéressante car cette méthode non destructive donne un signal directement lié à la quantité de matière fissile. Elle est, de plus, moins sensible au débit de dose gamma que les autres méthodes non destructives.

Deux méthodes de mesure ont été développées :

- La première consiste à détecter les neutrons retardés issus de fissions induites par une source de ^{252}Cf (1). A la suite d'expériences en laboratoire, à Cadarache, un dispositif de mesure a été installé dans l'usine de retraitement de Marcoule et testé pendant un an. Il a pour objet la détection de plutonium dans les raffinats d'extraction du troisième cycle plutonium. Cette mesure permet un contrôle avant l'envoi vers la station de traitement des effluents, et déclenche une alarme si la concentration dépasse 1,5 mg $^{239}\text{Pu/l}$.

- La deuxième méthode a été mise en oeuvre dans les installations du Laboratoire de Développement des Mesures Nucléaires à Cadarache. Elle consiste à détecter les neutrons prompts issus des fissions induites par un générateur de neutrons de 14 MeV (1). L'objectif est d'obtenir une limite de détection de l'ordre de 0,1 mg/l et une réponse linéaire jusqu'à des concentration de plusieurs dizaine de g/l.

INTRODUCTION

La mesure de la concentration en Plutonium contenue dans des solutions en écoulement est particulièrement importante pour les usines de retraitement.

Les méthodes de mesure utilisées doivent être non destructives, présenter un délai de réponse court ainsi qu'une bonne sensibilité.

Dans ce cadre, l'Interrogation Neutronique Active se révèle particulièrement intéressante car elle donne un signal directement lié à la quantité de matière fissile et elle est peu sensible au débit de dose gamma.



L'Interrogation Neutronique Active peut être mise en application selon deux modes :

- Détection des neutrons retardés issus de fissions induites par une source de ^{252}Cf .
- Détection des neutrons prompts issus des fissions induites par un générateur de neutrons de 14 MeV.

1. MESURES AVEC SOURCE DE ^{252}Cf

1.1. PRESENTATION GENERALE DU DISPOSITIF

La principale contrainte concernant ce dispositif à l'usine de Marcoule était de l'implanter dans une installation déjà existante et non prévue à cet effet.

Il a été placé sous une boîte à gant ou un espace de 2 m x 1 m x 1 m était disponible. La géométrie de l'installation est représentée sur la figure 1.

La solution s'écoule à travers un pot de passage, son volume est d'environ un litre et le débit de la solution de l'ordre de 10l/h.

Ce pot peut être isolé du reste du circuit afin de procéder à l'étalonnage à l'aide de solutions de concentrations en plutonium connues. Un doigt de gant placé en son centre permet le passage d'un tube guide source. La source de ^{252}Cf se déplace dans le tube guide entre la position d'irradiation (au centre du pot) et la position d'occultation (au coeur du château de stockage). Elle est déplacée grâce à un câble spiralé mû par une motorisation intégrée au château de stockage. Le moteur est piloté par un variateur de vitesse commandé par un automate. Le pot de passage est entouré de polyéthylène

dans lequel sont disposés six compteurs à ^3He de 15 cm de longueur utile et de 2,5 cm de diamètre.

Les détecteurs sont reliés à un amplificateur discriminateur (ADSF) fonctionnant en collection de courant.

Les impulsions mises en forme, sortant de l'ADSF sont envoyées à une carte d'acquisition multi canaux pilotée par un micro ordinateur. Ce dernier exploite les résultats à la fin de chaque cycle de mesure.

Un cycle de mesure comprend 9 s d'irradiation et 16 s de comptage. Des essais d'endurance mesurés par les services de la COGEMA ont montré que le dispositif pouvait fonctionner sans problème pendant $2,3 \cdot 10^6$ cycles, ce qui correspond à 3 ans de fonctionnement (le câble est changé ainsi que la source tous les 3 ans).

1.2. ANALYSE DES DONNEES

Plusieurs corrections sont appliquées au taux de comptage avant d'utiliser la courbe d'étalonnage pour convertir le comptage en masse de ^{239}Pu .

Le signal obtenu sur la carte multiéchelle est constitué du signal utile dû aux neutrons retardés, (représentés par une somme d'exponentielles décroissantes) et du bruit de fond.

Le traitement effectué consiste à déterminer, par une méthode des moindres carrés, l'amplitude du signal à l'origine et le bruit de fond, par ajustement d'une somme d'exponentielles au signal fourni par les ^3He . [réf 1 et 2]. L'intérêt de cette méthode est de prendre

en compte les variations de bruit de fond en cours de mesure.

Pendant l'irradiation, le retrait de la source, et la détection des neutrons retardés, des précurseurs sont "perdus" pour le comptage du fait de l'écoulement. Un facteur de correction, proportionnel au débit est appliqué (de l'ordre de 0,4 % pour 20l/h).

Enfin une correction, sur la décroissance de la source de ^{252}Cf par rapport à une date de référence est effectuée.

1.3. ETALONNAGE

L'étalonnage a été réalisé sur des solutions statiques, avec des concentrations en plutonium comprises entre 0,5 et 10,3 mg/l [fig 2]. La source de ^{252}Cf émettait $3,40 \cdot 10^8$ n/s. La courbe est linéaire avec une pente de 1,06 c/s/(mg/l) de Pu total. Ces performances permettent de garantir un seuil d'alarme à 1,5 mg/l. Des calculs MONTE CARLO à l'aide du code MCNP (3) ont montré que le comptage suivait linéairement la concentration jusqu'à environ 10g/l.

1.4. MESURES EN DYNAMIQUE

Une quantité connue de plutonium a été introduite, grâce à une seringue, en amont du dispositif de mesure.

La figure 3 montre l'évolution de la concentration mesurée au cours du temps. Le délai entre l'injection et le déclenchement de l'alarme correspond au temps nécessaire à la solution pour atteindre le pot de passage. L'intégrale du signal correspond à la quantité injectée en amont.

La figure 4 montre l'évolution du signal, en fonction du temps (30 s de durée de cycle) en fonctionnement normal (concentration inférieure à 0,5 mg/l). Pour évaluer une quantité transférée, l'intégration des résultats au cours du temps permet d'obtenir une précision de l'ordre de 0,2 mg/l pour 8 h de mesure.

2. MESURE AVEC GENERATEUR DE NEUTRONS A 14 MEV

2.1. PRESENTATION GENERALE DU DISPOSITIF

Le dispositif est schématisé sur la figure 5.

La conception du dispositif a été réalisée par des calculs Monte Carlo au moyen du code MCNP.

Le module d'émission neutronique est placé au centre du dispositif.

Un pot annulaire d'un volume d'environ 2l permet la circulation de la solution. Du graphite est disposé entre le générateur et la paroi intérieure du pot, et après la paroi extérieure du pot. Une couronne extérieure en polyéthylène comprend 4 compteurs ^3He de 45 cm de longueur utile, placés dans du polyéthylène entouré de Cadmium et de carbure de bore. Un compteur supplémentaire sert de moniteur de l'émission du générateur.

Le principe de la mesure est la "Differential Die Away Technique" déjà utilisé pour la mesure des déchets solides (4). Il consiste à ralentir rapidement les neutrons de 14 MeV émis par le générateur (pendant 15 μs par cycle) et à compter les neutrons rapides réémis lors des fissions induites par les neutrons du générateur, ralentis à une énergie inférieure à la coupure du Cadmium

(environ 0,4 ev). L'électronique de comptage est similaire à celle décrite pour les mesures avec ^{252}Cf .

2.2. ANALYSE DES DONNEES

La figure 6 représente l'évolution du signal, en fonction du temps après l'arrêt de l'émission du générateur, moyenné sur 100 000 cycles de 10 ms de durée chacun.

Le signal utile est déterminé entre 0,6 ms et 1,7 ms après l'arrêt de l'émission neutronique.

Le bruit de fond est évalué de 4 ms à 7 ms. Dans cette dernière zone on observe aussi le signal dû aux neutrons retardés.

Le signal net obtenu est corrigé de la variation d'émission du générateur au moyen d'un détecteur témoin.

2.3. EXPERIENCES EN LABORATOIRE

L'instrument a été testé à Cadarache, dans l'installation PROMETHEE, en utilisant des concentrations connues en ^{235}U . Les mesures ont été effectuées en statique, sans écoulement de la solution. L'émission neutronique du générateur était de 10^8 n/s. La figure 7 représente la droite d'étalonnage obtenue à partir de concentrations en ^{235}U comprises entre 0 et 100 mg/l. Des mesures de répétitivité, à la concentration de 100 mg/l ont permis de déterminer un écart type expérimental de 2 % (mesures de 5 minutes, sans correction du moniteur de générateur) en bon accord avec l'écart type théorique (1,93 %). Après correction à l'aide du moniteur, l'écart type expérimental est à 0,8 % de l'écart type théorique.

L'incertitude apportée par les fluctuations de l'émission du générateur est inférieure à 1 %.

les mesures ont permis de déterminer une limite de détection de 0,1 mg/l de ^{239}Pu en quinze minutes de mesure (selon la définition CETAMA /6/). Des calculs Monte Carlo ont montré la linéarité du signal jusqu'à des concentrations de l'ordre de 20g/l. A partir de 1 mg/l, la combinaison des mesures des neutrons prompts et des neutrons retardés permet d'envisager de mesurer séparément le ^{235}U et le ^{239}Pu pour des solutions contenant un mélange U/Pu.

CONCLUSIONS

Le dispositif de mesure de la concentration de plutonium par mesure des neutrons retardés est exploité en conditions industrielles dans l'usine de retraitement UP1 de Marcoule. Le dimensionnement de la source et des détecteurs a été réalisé pour répondre aux objectifs demandés (alarme pour 1,5 mg de Pu/l). L'augmentation de l'intensité de la source et du nombre de détecteurs permettrait d'obtenir une limite de détection de 0,3 mg de ^{239}Pu /l.

L'utilisation d'un générateur de neutrons à 14 MeV permet d'améliorer cette limite et présente l'avantage de ne pas nécessiter de château de stockage. La mesure sur 2 zones temporelles des contributions des neutrons prompts et retardés permet d'envisager la mesure simultanée de ^{235}U et ^{239}Pu , dans les cas de mélanges U/Pu, à partir d'une concentration de 1 mg/l. Les 2 méthodes donnent une réponse linéaire jusqu'à des concentrations de 10 à 20g/l.

REMERCIEMENTS

Les auteurs tiennent à remercier les équipes de COGEMA MARCOULE, en particulier MM. CHAMBON, MAZELLIER et TRONC pour leur aide et leur soutien pendant les campagnes d'essais.

REFERENCES

- [1] C. PASSARD
"Application des méthodes d'interrogation neutronique active à l'analyse en ligne dans les usines de retraitement"
Thèse Doctorat - 02/1993.
- [2] P. RINARD, C. PASSARD, G. BIGNAN
"Comparison of shuffler data analysis techniques."
LANL report 12468 MS UC 700 - 1992.
- [3] BRIESTMEIER J.F., Editor
"MCNP - A general Monte Carlo Code for neutron and photon transport".
LANL report LA-7396 M.
- [4] J. ROMEYER-DHERBEY & AI
"Determination of alpha activity and fissile mass in solid wastes by systems using neutron interrogation".
Non destructive assay of radio active waste topical meeting.
CEN CADARACHE - Report EUR 12890
EN 1990.
- [5] P. RINARD & AI
"Monitoring a liquid waste stream with a delayed neutron instrument".
Non destructive assay of radioactive waste Topical Meeting
CEN CADARACHE - Report EUR 12890 -
EN 1990.

/6/ "Statistique appliquée à l'exploitation des mesures".

CETAMA (MASSON - 1986).

Atelier 3CPu de fusine UP1 à MARCOULE

Figure n°1 : Dispositif de Mesure

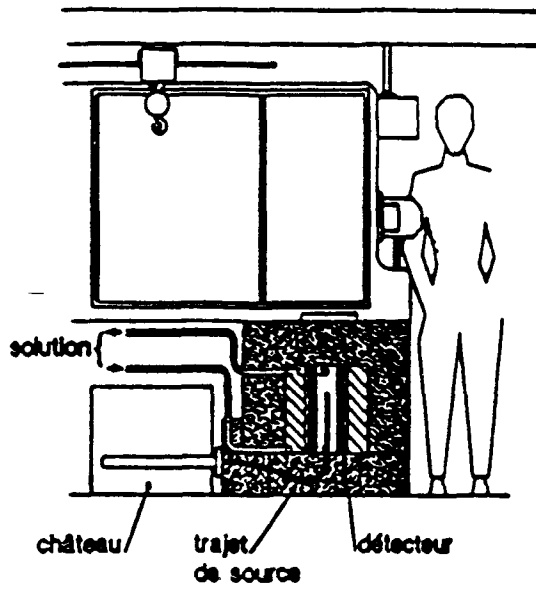


Figure n°2 Etalonnage JCPu

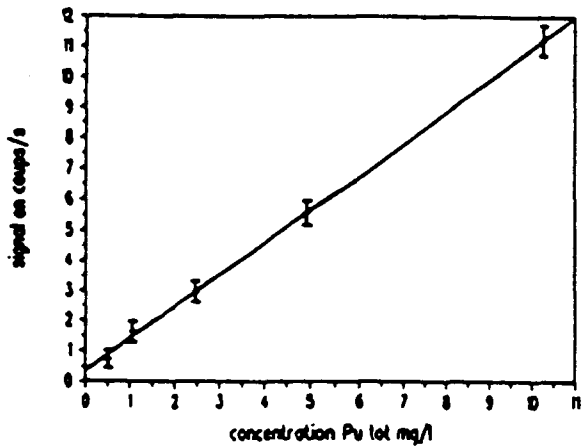


Figure n°3 Simulation d'une fuite Pu (3CPu)

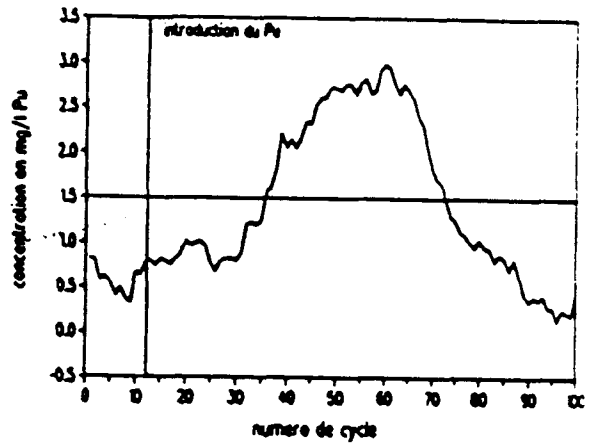


Figure n°4 Mesure JCPu

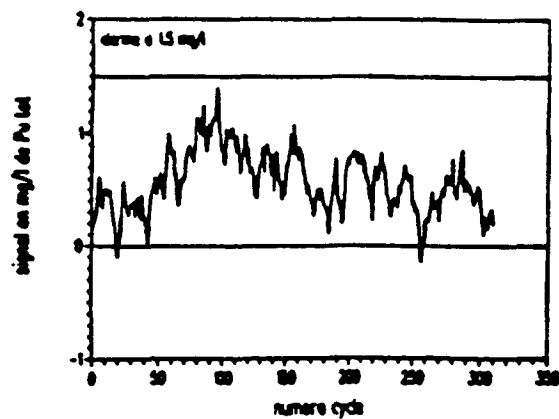


Figure n°6
**INSTALLATION DE MESURE
 SUR POT DE PASSAGE AVEC GÉNÉRATEUR**

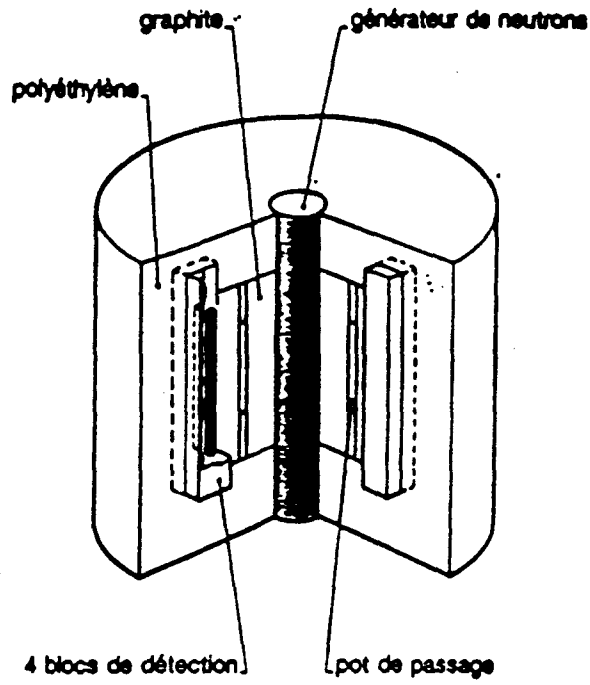


Figure n°6 : Réponse des détecteurs

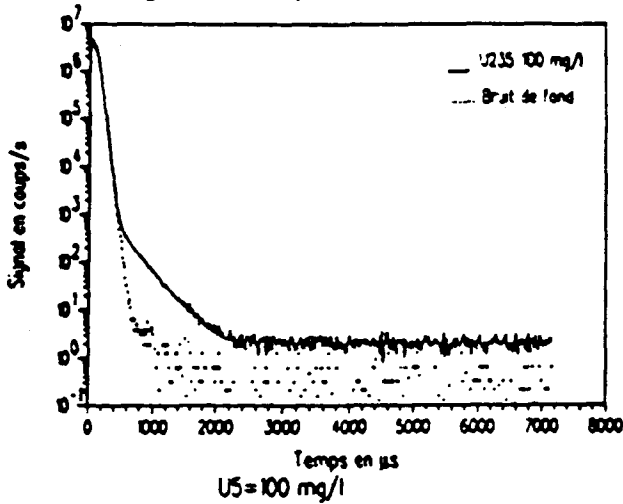


Figure n°7 : Etalonnage
 Mesure des neutrons prompts

