

ETUDES DE CORRELATIONS ISOTOPIQUES  
POUR DES APPLICATIONS AUX FONCTIONNEMENTS  
DES REACTEURS ET DES USINES DE RETRAITEMENT.

M. DARROUZET - A. GIACOMETTI

DEPARTEMENT DES REACTEURS A EAU  
Service d'Etudes Nucléaires

Septembre 1979

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE  
Centre d'Etudes Nucléaires de CADARACHE  
13115 - Saint Paul lez Durance

89100001

## INTRODUCTION

L'utilisation de corrélations calculées entre les compositions des combustibles irradiés, associées avec des mesures destructives ou non destructives sur ces combustibles, peut présenter un grand intérêt pour les exploitants des réacteurs et des usines de retraitement.

Il est en effet possible de vérifier et de contrôler, soit les calculs, soit les analyses effectuées sur ces combustibles.

Parmi les diverses applications possibles, nous en présenterons deux qui ont déjà fait l'objet de travaux importants : la première concerne le contrôle du bilan d'entrée dans les usines de retraitement, la seconde la détection des assemblages ayant des ruptures de gaines dans le réacteur en fonctionnement.

Le calcul des corrélations pose des problèmes car, pour être utilisable d'une manière industrielle il doit être simple et ne nécessiter que des informations divulguables sans trop de difficultés. Nous indiquerons la manière dont nous résolvons ce problème.

.../...

## I - INTERET DES CORRELATIONS CALCULEES

### I -1. Motivations

La connaissance de la composition des combustibles irradiés est un problème important pour les exploitants des réacteurs et des usines de retraitement et plus généralement pour le cycle du combustible. Il est souvent utile de pouvoir la contrôler.

Dans bien des cas il n'est pas possible d'accéder directement à cette composition, en particulier si on ne peut effectuer des mesures destructives. Cette situation est la cas de tous les assemblages avant dissolution.

Dans d'autres cas il est intéressant de pouvoir contrôler les analyses ou bien permettre de supprimer des analyses chères et couteuses au niveau industriel tel que les rapports  $\frac{Pu}{U}$  ou  $\frac{Nd}{U}$ .

Un paramètre très important, le taux de combustion, ne peut être déterminé que d'une manière indirecte. Or la plupart des codes d'évolution sont recalés sur ce paramètre. Sa détermination est donc importante.

On cherche à trouver des solutions à ces problèmes en utilisant les relations physiques reliant les différents nucléides dans le combustible irradié.

### I -2. Principe du calcul des corrélations

Certains ont proposé d'utiliser des relations ou corrélations établies à partir de banques de données. Les risques présentés par l'utilisation de corrélations empiriques ont été explicités par ailleurs /1/ /2/ nous ne reviendrons pas sur ce sujet.

En fait, depuis de nombreuses années, ce type de problème se pose aux physiciens des réacteurs.

Au CEA un important effort aussi bien expérimental que théorique a permis de mettre au point des méthodes de calcul qualifiées.

La validité des résultats repose sur des mesures dans des expériences critiques, sur des suivis de réacteurs, sur des analyses de combustibles irradiés.

Sur le plan pratique cependant, des difficultés interviennent. Les méthodes de calcul de réacteur sont complexes car elles nécessitent une représentation détaillée (nombre d'informations et coût de calcul très important) pour chaque étape de l'irradiation.

D'autre part, à cause des problèmes de "secret industriel" les exploitants ne tiennent pas à fournir trop d'informations sur les chargements de leur réacteur.

C'est ce qui nous a conduits à adopter des procédures de calcul simplifiées dont les principes sont les suivants :

- Prise en compte des principales caractéristiques du réacteur et du combustible pour permettre des calculs neutroniques "quasi ponctuels précis",
- Utilisation des codes de cellules qualifiés pour la détermination au niveau de l'assemblage ou de zones d'assemblages, des sections efficaces moyennes et de leur variation avec l'irradiation,
- Réalisation des calculs d'évolution complets avec un code sans dimension d'espace, permettant si nécessaire de tenir compte d'un historique de puissance approximatif. L'importance de ces approximations nous oblige à prendre des précautions :  
contrôle des calculs,  
études de la sensibilité des corrélations à divers paramètres.

On donnera quelques exemples dans les chapitres suivants :

### I -3. Choix des corrélations

Parmi des différentes corrélations possibles, celles qui nous paraissent le plus intéressantes pour des applications "industrielles" sont celles qui permettent d'obtenir :

- le taux de combustion
- le rapport Pu/U
- la puissance en fin d'irradiation
- le temps de refroidissement.

Pour que ces corrélations soient utilisables il faut que les concentrations de nucléides qui interviennent soient facilement mesurables. D'où l'intérêt particulier pour celles qui utilisent :

- la composition isotopique de l'Uranium
- la composition isotopique du Plutonium
- la composition isotopique du Césium.

Dans les chapitres suivants nous donnerons deux exemples d'utilisation de ces corrélations.

## II - UTILISATION DES CORRELATIONS POUR LA DETERMINATION DU BILAN D'ENTREE DANS LES USINES DE RETRAITEMENT.

### II-1. Principe

Le bilan d'entrée dans les usines de retraitement est très important. Il permet de contrôler les quantités de matière fissile introduite dans les usines, de connaître les pertes au cours du retraitement. Il est actuellement déterminé par une méthode gravimétrique.

Le principe de la méthode est basé sur la relation suivante

Masse Uranium initial = Masse d'uranium final + masse de plutonium  
+ Masse des produits de fission + Masse du Neptunium et des transplu-  
tonium

ou en notation symbolique :

$$M_{U0} = M_U + M_{Pu} + M_{PF} + M_T$$

La masse du Neptunium et des transplutoniens peuvent être négligée.

La masse d'uranium est déduite de la masse uranium initiale  $M_0$  par

$$M_U = M_{U0} \times \frac{1}{\left(1 + \frac{M_{Pu}}{M_U} + \frac{M_{PF}}{M_U}\right)}$$

La masse de plutonium est déduite à partir du rapport  $\frac{M_{Pu}}{M_U}$

$M_{U0}$  est une quantité fournie par l'exploitant

$\frac{M_{PF}}{M_U}$  et  $\frac{M_{Pu}}{M_U}$  sont respectivement déduits à partir des mesures de Néodyme et du rapport Pu/U.

Ces deux mesures sont très délicates du point de vue industriel car elles nécessitent de prendre de grandes précautions et des temps de mesures longs.

Dans le tableau I sont indiqués les ordres de grandeur des différents termes dans le cas d'un PWR;

Une connaissance de 3 à 4 % sur le taux de combustion est suffisante. Par contre, on cherche à déterminer la masse de plutonium à quelques pour mille.

## II-2. Corrélations retenues

Les corrélations suivantes ont été actuellement retenues pour les combustibles de réacteurs eau légère./3/

Pour le taux de combustion :

89100006

$$I = \gamma(I) \times Nd \quad (1)$$

$$I = a(I) \Delta U_5 \quad (2)$$

$$I = b(I) \Delta U_6 \quad (3)$$

$$I = \rho(I) R_{Cs} \quad (4)$$

Cette dernière corrélation sera traitée dans le chapitre 3. Nous n'en parlerons pas ici.

Pour le rapport  $\frac{Pu}{U}$  :

$$\frac{Pu}{U} = C(I) \times I \quad (5)$$

$$\frac{Pu}{U} = \beta(I) \times I \times \frac{Pu9}{Pu0} \quad (6)$$

$$\frac{Pu}{U} = \delta(I) \times \frac{Pu2 \times Pu9}{(Pu0)^2} \quad (7)$$

$$\frac{Pu}{U} = h(\Delta U5) \times \Delta U5 \quad (8)$$

$$\frac{Pu}{U} = \eta(\Delta U5) \times \frac{Pu2 \times Pu9}{(Pu0)^2} \quad (9)$$

Les corrélations (8) et (9) sont en fait des variantes de (5) et (7)

Dans ces relations I est le taux de combustion massique :

$$\Delta(U5) = \left( \frac{235 U}{U} \right)_{\text{final}} - \left( \frac{235 U}{U} \right)_{\text{initial}}$$

$$\Delta(U6) = \left( \frac{236 U}{U} \right)_{\text{final}} - \left( \frac{236 U}{U} \right)_{\text{initial}}$$

$$Nd = \frac{148 Nd}{U} \text{ final}$$

$$R_{Cs} = \left( \frac{134 Cs}{137 Cs} \right) \text{ final}$$

Pour le retraitement des combustibles de réacteurs à neutrons rapides toutes ces relations ne peuvent être utilisées, et on a retenu pour la taux de combustion uniquement les relations (1), (2), (3) et pour le  $\frac{Pu}{U}$  du fait que la variation de ce rapport est faible, on utilise :

$$\Delta \frac{Pu}{U} = m(I) \times I$$

$\frac{Pu}{U}$  est déduit de la teneur initiale en Pu

$$\frac{Pu}{U}_{\text{final}} = \frac{Pu}{U}_{\text{initial}} + \Delta \frac{Pu}{U}$$

Il est évident que d'autres corrélations sont possibles.

### II -3. Méthode de calcul

Elle repose sur l'utilisation d'un code de calcul neutronique adapté au type de réacteurs dont les combustibles sont retraités.

On utilise le code APOLLO / / pour les réacteurs à eau, et le code HETAIRE (du formulaire CARNAVAL) / / pour les réacteurs à neutrons rapides.

A titre d'exemple nous indiquerons dans la suite la procédure définie pour les réacteurs PWR, mais pour les réacteurs BWR et rapides, les procédures sont très voisines.

Le calcul d'assemblage doit être réalisé pour chaque réacteur (ou type de réacteur) pour chaque type d'assemblage ayant des caractéristiques géométriques différentes, un enrichissement différent ou ayant des poisons.

Le paramètre le plus important à conserver est le bilan matière. Les trous d'eau et les lames d'eau entre assemblages doivent être pris en compte.

Le calcul des assemblages avec APOLLO sont effectués en multicellule, en distinguant uniquement 2 ou 3 cellules. La densité d'eau, la concentration en bore, la température combustible et modérateur sont des valeurs moyennes.



Les calculs sont réalisés à  $keff = 1$  et puissance constante

Les sections efficaces (99 groupes) sont condensés à 1 groupe et paramétrés en fonction du burn up et sont introduites dans le code d'évolution ponctuel EVOGENE qui nous permet de sortir les résultats sous une forme adaptée à nos problèmes, de pouvoir calculer les activités, et de pouvoir prendre en compte finement l'historique du combustible si nécessaire.

Les corrélations sont ensuite calculées.

Dans la pratique, les différentes fonctions  $a$ ,  $b$ ,  $\gamma$ , etc. sont mises sous forme de polynôme du 3ème degré facilement exploitable sur machine à calculer de poche (par exemple :  $a(I) = a_0 + a_1 I + a_2 I^2 + a_3 I^3$ ) et paramétrées en fonction de l'enrichissement car l'enrichissement initial des assemblages peut varier légèrement et cette méthode évite de refaire des calculs complexes, d'autre part les assemblages sont dissous par lots de 2 ou 4 suivant les cas et des interpolations sont nécessaires.

A titre d'exemple nous donnons les valeurs des coefficients calculées entre le taux de combustion massique et la formation de  $^{236}\text{U}$  pour le cas d'un réacteur à eau pressurisée.

Il est facile de constater que les termes non linéaires ne sont pas négligeables et que la variation avec l'enrichissement initial est importante.

#### II -4. Sensibilité des corrélations à différents paramètres.

Sur l'exemple précédent, on a pu constater que la teneur initiale du combustible est un paramètre important. Les simplifications du calcul peuvent aussi avoir des effets.

Afin de pouvoir juger de l'importance de ces approximations nous donnons dans le tableau 3 quelques exemples de sensibilité.

De ces quelques exemples nous pouvons déduire quelques conclusions. Les relations entre le taux de combustion et le TCF sont sensibles à la composition initiale. Les relations  $\frac{PU}{U}$  sont sensibles aux spectres.

89100009

L'erreur aux taux de combustion peut être fortement diminuée par itération.

Il en résulte qu'il y a toujours intérêt à utiliser plusieurs corrélations de sensibilité différentes pour éviter un risque d'erreur.

## II -5. Applications

Ces corrélations ont été appliquées avec la participation des exploitants dans le cas des campagnes de retraitement effectuées à la Hague ainsi que dans le cadre des échanges internationaux (ICE, TASTEX).

Avant d'appliquer les corrélations nous avons testé la validité de nos calculs, sur des analyses effectuées sur divers combustibles irradiés, en particulier sur des mesures effectuées sur des combustibles provenant de la CNA, pour les réacteurs eau légère et sur les mesures effectuées sur du combustible PHENIX pour les réacteurs à neutrons rapides. Nous avons bien entendu recontrôlé nos calculs sur les résultats obtenus lors du retraitement.

Dans le tableau IV nous présentons les écarts entre l'expérience et le calcul pour environ 130 dissolutions d'assemblages PWR. Des résultats similaires pourraient être présentés pour les BWR.

Ces résultats mettent en évidence la validité du schéma de calcul adapté.

La comparaison des taux de combustion déduits à partir de  $\Delta U5$  et de  $\Delta U6$  avec ceux fournis par le réacteur sont donnés dans le tableau V. Dans ce même tableau nous indiquons les écarts de  $\frac{Pu}{U}$  déduits à partir des corrélations 7 et 8.

De l'expérience acquise lors des différentes campagnes de retraitement, il ressort que l'utilisation des corrélations est une solution très prometteuse. Des travaux se poursuivent dans deux voies : rechercher d'autres relations et mieux cerner l'influence des divers paramètres ; effectuer des essais systématiques sur les campagnes de retraitement à La Hague.

III - UTILISATION DE LA MESURE D'ACTIVITE DES CESIUM 134 ET 137 POUR LA DETECTION DE CRAYONS RUPTES DANS LES REACTEURS PWR.

III -1. Principe

Le  $^{137}\text{Cs}$  de 30 ans de période est formé par fission. Il est représentatif du taux de combustion.

Le  $^{134}\text{Cs}$  de période 2,1 ans est formé par capture neutronique à partir du  $^{133}\text{Cs}$  lui-même formé par fission.

Il existe donc une corrélation physique entre le taux de combustion et le rapport  $\frac{^{134}\text{Cs}}{^{137}\text{Cs}}$ .

En cas de rupture d'un élément combustible, le Césium ainsi que certains autres produits s'échappent du combustible. Cette sortie est favorisée lors d'une baisse en puissance. Il est alors possible de mesurer l'activité du  $^{134}\text{Cs}$  et du  $^{137}\text{Cs}$  avec une précision de quelques pour cent à cette occasion. Ce Césium est représentatif soit de l'ensemble du crayon rupté, soit de la partie où se trouve la rupture en fonction de divers paramètres en particulier de la température du combustible.

Nous n'aborderons pas ici ces problèmes qui font l'objet d'importants travaux par ailleurs. Notre exposé se limite uniquement à la relation reliant le taux de combustion au rapport  $\frac{^{134}\text{Cs}}{^{137}\text{Cs}}$ .

L'exploitant connaît avec une précision de quelques pour cent le burn up du combustible dans son réacteur. Il peut, connaissant le fonctionnement, en théorie, déterminer pour toutes les parties combustibles le rapport  $\frac{\text{Cs } 134}{\text{Cs } 137}$ .

On peut donc en cas de rupture déterminer le ou les assemblages où la rupture est susceptible d'avoir eu lieu.

L'intérêt de savoir si cette rupture a eu lieu dans un assemblage qui doit être déchargé ou dans un assemblage qui devrait être rechargé, est évident pour préparer les plans de rechargement.

### III -2. Méthode de calcul

La méthode de calcul est identique à celle décrite, calcul avec APOLLO puis calcul avec un code d'évolution ponctuel qui dans le cas du Cs peut être très simplifié.

Il est nécessaire ici de prendre en compte l'histoire du réacteur, en particulier les arrêts, mais ce découpage peut être grossier (puissance moyenne de fonctionnement pendant des steps du mois par exemple).

Les calculs peuvent être réalisés pour des lots d'assemblages ayant une composition et une histoire "neutronique" voisines.

### III -3. Sensibilité

Sur la figure 1 nous présentons l'évolution du rapport  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  pour un réacteur PWR en fonction du taux de combustion et de l'enrichissement initial. Ces calculs, faits à puissance constante, montrent que le rapport est principalement sensible avec le taux de combustion mais dépend beaucoup moins de l'enrichissement.

Les différentes études montrent que ce rapport varie de l'ordre de + 5 % (à 10000 MWj/T) avec la présence de poisons consommables en pyrex. La variation du rapport de modération joue aussi. On pourrait craindre, du fait de la courte période du  $^{134}\text{Cs}$  qu'il soit nécessaire de prendre finement en compte l'historique du combustible.

Les études de sensibilité montrent qu'une prise en compte mensuel de la puissance du réacteur permet pratiquement d'éliminer l'erreur due à ce facteur.

### III -4. Applications

Les calculs du  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  ont avant d'être utilisés été testés sur des solutions provenant de combustibles irradiés, en particulier sur des échantillons provenant du réacteur de la CNA. Les résultats de ces

tests sont présentés sur la figure 2. La méthode a été appliquée sur différents réacteurs de puissance (CHOOZ, TINGE, FESSENHEIM).

Sur les résultats obtenus on peut faire les commentaires suivants : Si on excepte les deux premiers cycles, les trois charges dans les réacteurs PWR ont des enrichissements voisins mais des taux de combustion très différents. La méthode se révèle très efficace pour déterminer le lot ayant un crayon rupté.

Par contre, pour les deux premiers cycles et surtout pour le premier cycle où la différence entre les assemblages porte sur une différence d'enrichissement beaucoup plus que sur une différence de taux de combustion, et où les problèmes de "perturbations locales" qui s'atténuent avec le repositionnement des assemblages et le taux de combustion sont plus importants, les problèmes sont beaucoup plus délicats.

#### CONCLUSION

Les exemples que nous avons présentés mettent en évidence l'intérêt des corrélations calculées. La méthode de calcul proposée montre qu'il est possible d'utiliser des solutions simples pour leur détermination, applicables dans un context industriel.

Dans ce domaine, outre les problèmes de bilan d'entrée dans les usines ou de localisation des ruptures de gaines, d'autres travaux sont développés.

- Spectrométrie  $\gamma$  sur assemblages en piscine de réacteur pour le contrôle de la puissance ou du burn up des assemblages,
- Spectrométrie  $\gamma$  sur assemblages en piscine de stockage des usines de retraitement pour identification des assemblages ou le contrôle des taux de combustion,
- Contrôle des coques avant leur rejet.

## REFERENCES

- /1/ - J. BOUCHARD, M. DARROUZET, M. ROBIN  
Etude des corrélations isotopiques sur les combustibles irradiés.  
Application pratique aux mesures sur des combustibles de réacteurs  
à eau.  
Symposium ESARDA - STRESA 9 - 11 Mai 1978.
- /2/ - J. BOUCHARD, G. DEAN, P. PATIGNY, M. ROBIN  
Possibilités offertes par la prise en compte de l'histoire du  
combustible dans le contrôle à l'entrée des usines de retraitement.  
Colloque international sur l'application des garanties aux matières  
nucléaires. AIEA - VIENNE 2 - 6 Octobre 1978.
- /3/ - J. BOUCHARD, A. GIACOMETTI, M. ROBIN  
Contrôle du bilan d'entrée des usines de retraitement à partir  
des données de réacteurs.  
Symposium ESARDA - BRUXELLES 25 - 27 Avril 1979.
- /4/ - A. KAVENOKY  
Un système modulaire pour le calcul des réacteurs à eau ordinaire  
BIS CEA n°212 (2976)
- /5/ - P.J. CHAUDAT, J.Y. BARRE, A. KHAIRALLAH  
Improvement of predicted characteristics for fast power reactors  
from integral experiments .  
CADARACHE Version III - Multigroupe set AIEA symposium  
TOKYO 3 (1973) 1207.

TABLEAU I

Ordre de grandeur des masse de plutonium de produits de fission et des transplutoniens dans un combustible irradié PWR (en %)

	$\frac{M \text{ Pu}}{M \text{ U}}$	$\frac{M \text{ PF}}{M \text{ U}}$	$\frac{M \text{ T}}{M \text{ Pu}}$
12000 MWJ/T	0.5	1.3	0.01
24000 MWJ/T	0.8	2.6	0.03
36000 MWJ/T	1.0	3.8	0.07

TABLEAU II

Coefficients calculés de la corrélation entre taux de combustion massique et la formation de  $^{236}\text{U}$  pour un cas particulier de réacteur à eau pressurisée.

$$I = b(I) \times \Delta(U6) \quad \text{avec } b(I) = b_0 + b_1 I + b_2 I^2 + b_3 I^3$$

(I et  $\Delta(U6)$  sont exprimés en %)

Enrichissement initial en $^{235}\text{U}$	$b_0$	$b_1$	$b_2$	$b_3$
2.2 %	5.242	1.299	0.0648	0.0226
2.5 %	5.089	1.099	0.0231	0.0205
2.8 %	5.006	0.960	0.0097	0.0182
3.2 %	4.892	0.810	0.0004	0.0146

TABLEAU III

Sensibilité de différentes corrélations aux perturbations de spectre  
pendant l'irradiation

Influence sur la relation		Perturbation			
		A	B	C	D
TCF	$\Delta (U5)$ (2)	3 %	5 %	2 %	2 %
TCF	$\Delta (U6)$ (3)	1 %	5 %	0	1 %
Pu/U	$Pu9/Pu0$ (6)	0.5 %	10 %	3 %	5 %
Pu/U	$\frac{Pu2/Pu9}{Pu0/Pu9}$ (7)	0	1 %	2 %	4 %

Référence : PWR Zr type 17 x 17 ;  $E_i = 3.2 \%$  ;  $I = 24000$  MWJ/T

Perturbation :

A : Erreur de 1 % sur l'enrichissement initial

B : Erreur de 10 % sur le taux de combustion annoncé (sans itération)  
en pratique les conséquences de cette incertitude sont négligeables  
dès lors que l'on itère sur le taux de combustion.

C : Empoisonnement partiel de l'assemblage pendant l'irradiation  
(Pyrex)

D : Variation de 5 % du rapport de modération moyen.



TABLEAU IV

Ecart expérience-calcul sur des mesures effectuées sur prélèvement dans le dissolvant à La Hague. (cas de PWR)

$\frac{^{239}\text{Pu}}{^{238}\text{U}}$	$\frac{^{240}\text{Pu}}{^{239}\text{Pu}}$	$\frac{^{242}\text{Pu}}{^{239}\text{Pu}}$
$0.4 \pm 2.0$	$2.4 \pm 1.8$	$6.8 \pm 4.8$

Le calcul a été recalé sur le taux de combustion déduit du  $^{235}\text{U}$

TABLEAU V

Détermination des taux de combustion et du rapport Pu/U  
Comparaison des différentes méthodes.

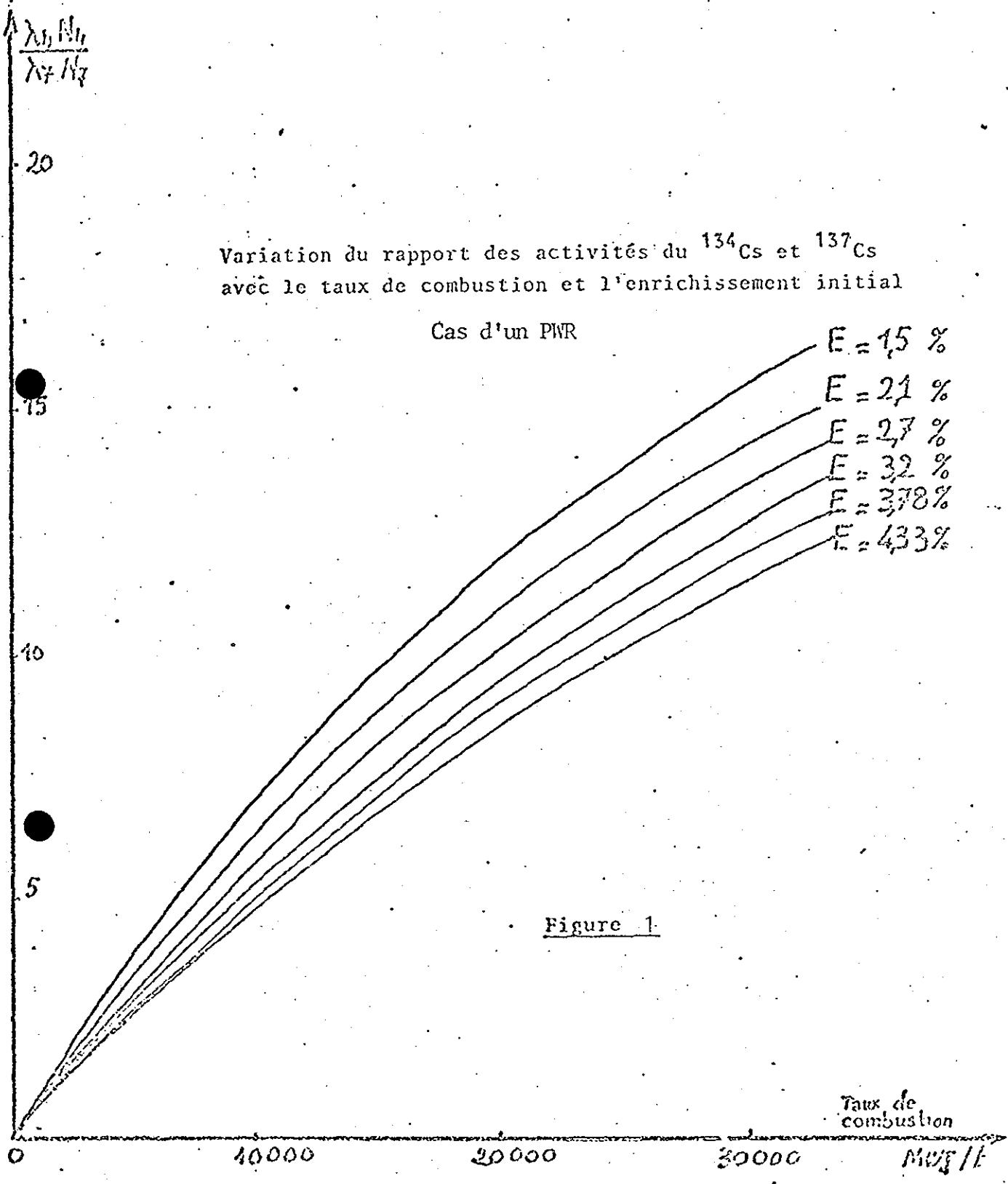
$\Delta U5 - R = - 3.3 \pm 2.1 \%$	$\Delta U5 - A = - 0.3 \pm 2.8$
$\Delta U6 - R = - 2.9 \pm 3.2 \%$	$\frac{\text{Pu}^2 \times \text{Pu}^9}{(\text{PuO})^2} - A = + 0.1 \pm 2.6$

$\Delta U5$  et  $\Delta U6$  : taux de combustion déduit par la corrélation (2)  
et par la corrélation (3)

R : taux de combustion réacteur

$\Delta U5$  et  $\frac{\text{Pu}^2 \times \text{Pu}^9}{(\text{PuO})^2}$  : rapport  $\frac{\text{Pu}}{\text{U}}$  déduit par la corrélation (8)  
et la corrélation ( )

A : analyse du rapport  $\frac{\text{Pu}}{\text{U}}$



$$\frac{\lambda_2 N_2}{\lambda_1 N_1}$$

Spectrométrie  $\gamma$  sur solutions de combustibles CNA  
Résultats bruts de mesure

- x Echantillons irradiés pendant 3 cycles
- Echantillons irradiés pendant 2 cycles

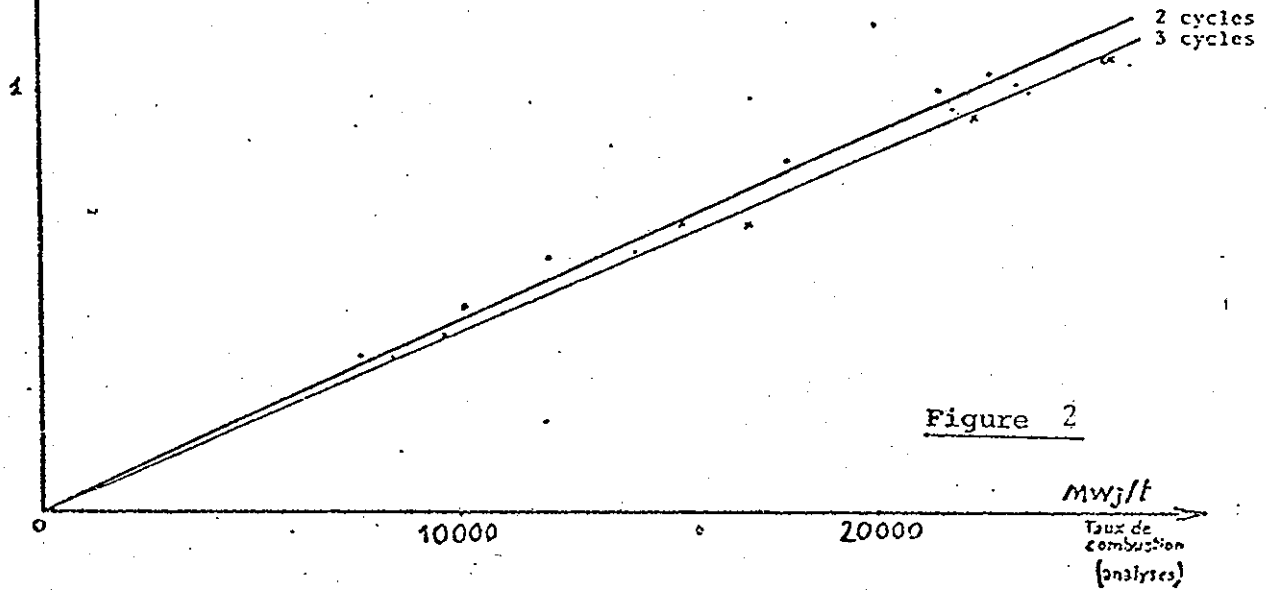


Figure 2