

MESURE DE LA PUISSANCE RESIDUELLE  
TOTALE EMISE PAR LES PRODUITS DE  
FISSION THERMIQUE DE  $^{239}\text{Pu}$  ET  $^{233}\text{U}$

- Ch. FICHE -

DEPARTEMENT DES REACTEURS A EAU  
SERVICE D'ETUDES NUCLEAIRES

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE  
Centre d'Etudes Nucléaires de CADARACHE  
BP N° 1 - 13115 Saint-Paul-lez-Durance

88130001

## RESUME

=====

Nous présentons dans ce rapport les résultats de mesures de puissance résiduelle  $\beta + \gamma$  libérée par les produits de fission thermique du Plutonium  $^{239}$  et de l'Uranium  $^{233}$ .

Ces résultats sont donnés en MeV/s pour une fission pour des temps de refroidissement s'étendant de 60 s à  $10^5$  secondes. Les erreurs expérimentales sont données et discutées.

Les résultats d'une campagne précédente de mesures pour  $^{235}\text{U}$  sont regroupés avec ceux-ci à titre comparatif.

## SUMMARY

-----

Presented here are experimental results for total  $\beta + \gamma$  decay heat measurements following  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{233}\text{U}$  thermal fission.

Results are given for one instantaneous fission in MeV/s and for various cooling times between 60 and  $10^5$  secondes. Experimental uncertainties are discussed.

For sake of comparison,  $^{235}\text{U}$  results obtained in a previous experiment are also given.

88130007

## I - INTRODUCTION

L'énergie dégagée par les produits de fission est une donnée de base qui intervient à tous les stades de la vie d'un combustible nucléaire : pendant le fonctionnement du réacteur elle représente environ 10 % de la puissance ; après l'arrêt elle conditionne le refroidissement de secours, la manutention, le transport et le retraitement du combustible.

Cette puissance se dégage de manière approximative égale sous forme de bêta et de gamma. Une méthode permettant de la déterminer globalement consiste à l'absorber le plus complètement possible dans la cellule d'un calorimètre et à mesurer le flux de chaleur résultant entre la cellule et un thermostat.

Cette technique a été utilisée par LOTT et al /1,4/ pour mesurer la puissance résiduelle totale émise par les produits de fission thermique de  $^{235}\text{U}$ . Nous l'avons reprise ici pour  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{233}\text{U}$  avec le même appareillage.

Les résultats des mesures sont présentés sous forme de tableaux et de courbes donnant la puissance totale dégagée par une fission en fonction du temps écoulé après la fission dans un domaine allant de 60 à  $10^5$  secondes.

Les erreurs expérimentales sont indiquées dans tous les domaines de mesure. Elles sont surtout importantes en deça de 200 secondes de refroidissement à cause d'une forte augmentation des erreurs aléatoires inhérentes aux imperfections du calorimètre utilisé.

Dans un but comparatif les résultats de /4/ pour  $^{235}\text{U}$  sont regroupés avec les nôtres.

.../...

88130005

## II - DISPOSITIF EXPERIMENTAL

La description détaillée du dispositif expérimental a déjà été publiée /1/. Nous en rappellerons donc ici simplement les caractéristiques principales.

### II.1 - Calorimètre (Figure N° 1)

Le calorimètre est du type à conduction (CALVET et PRAT 1956)/2/. Il comporte deux cellules d'argent massif, de 76 mm de diamètre et de 100 mm de haut, équipées de piles thermoélectriques identiques. Au centre d'une des cellules est placé l'échantillon de matière fissile, l'autre cellule sert de référence. Les cellules sont réunies à un bloc thermostaté par 1216 couples Cuivre-Constantan montés en série, qui assurent la conduction thermique et la mesure du flux de chaleur.

En régime permanent la différence de température est directement proportionnelle à la puissance dégagée dans la cellule. La réponse en régime transitoire est caractérisée par une constante de temps d'environ 120 s. Le calorimètre n'admet que des échantillons en forme de plaquette de faible épaisseur dont les caractéristiques sont données plus loin.

### II.2 - Transfert des échantillons

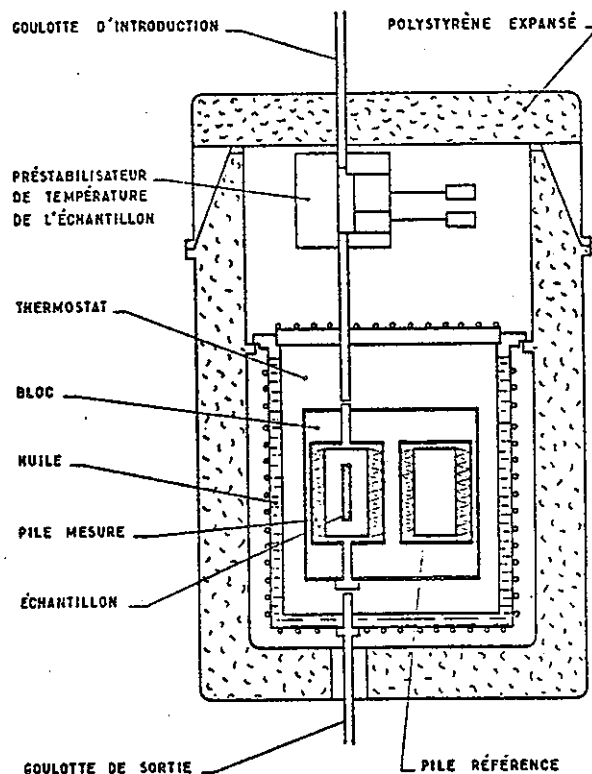
Un dispositif pneumatique permet l'envoi d'une navette contenant les échantillons en position d'irradiation et son retour. Les temps de transfert correspondants sont d'environ 0,8 seconde. Sous flux, une circulation forcée d'air limite l'échauffement de la plaquette.

Le chargement et le déchargement de la navette sont effectués par un système mécanique à pince commandé à distance et automatisé. Au déchargement, la plaquette tombe par gravité dans le calorimètre. Le temps de transfert total, de la position irradiation à l'entrée dans le calorimètre, est d'environ 10 s.

Une fois dans le calorimètre l'échantillon séjourne d'abord dans l'étage de préstabilisation, où sa température est amenée à une valeur aussi voisine que possible de celle de la cellule de mesure. Le temps minimal de préstabilisation déterminé expérimentalement est de l'ordre de 10 s. Ce temps écoulé, la plaquette tombe en cellule de mesures, où un sabot actionné par un vérin hydraulique vient assurer le contact thermique. C'est la mise en action du sabot qui est prise comme origine relative des temps de mesures et comme origine absolue des courbes de transfert et de réponse percutive (Cf. § IV).

Figure N° 1

SCHEMA DE PRINCIPE DU CALORIMETRE  
D'APRES /4/



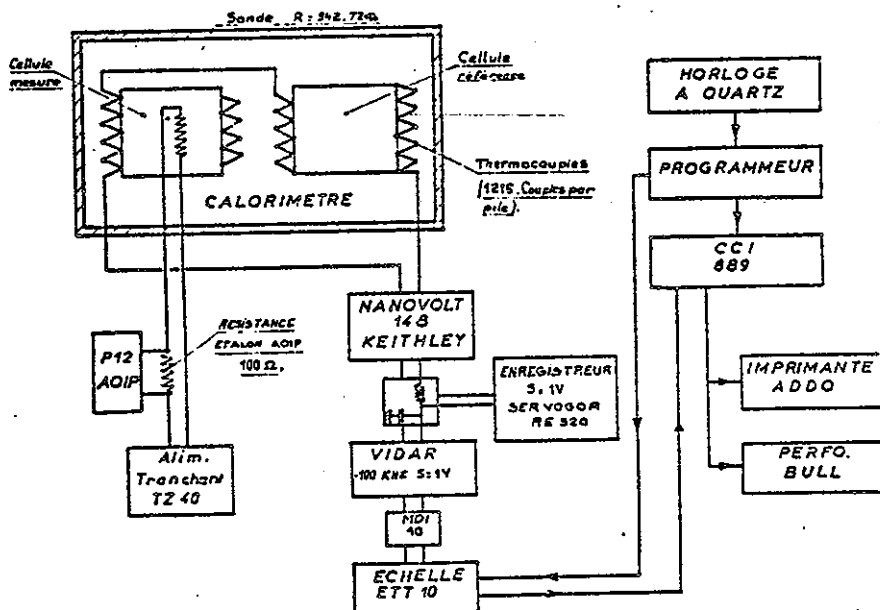
II.3 - Dispositif de mesures et d'enregistrement (Figure N° 2)

Le signal des thermocouples est amplifié par un nanovoltmètre KEITHLEY, modèle 128, et converti en fréquence par un VIDAR 100 kHz. Un ensemble d'échelles, piloté par une horloge à quartz, compte les impulsions pendant des intervalles de temps fixes et régulièrement espacés (par exemple 10 s de comptage et 10 s d'arrêt).

Ces comptages sont transcrits sur imprimante (ADDO) et sur perforateur (BULL) de cartes avec la date et l'heure de la fin de mesure.

Figure N° 2

SCHEMA DE L'ELECTRONIQUE  
DE MESURES D'APRES /1/



#### II.4 - Implantation générale - Irradiations

Le calorimètre est implanté dans le hall de la pile ZOE, côté Sud, à l'intérieur d'une casemate de béton.

L'irradiation se fait dans le réflecteur de graphite de la pile en position médiane du canal 7 au voisinage immédiat de la cuve d'eau lourde du coeur. Une chambre à fission, placée à proximité, permet le pilotage de l'irradiation à puissance constante.

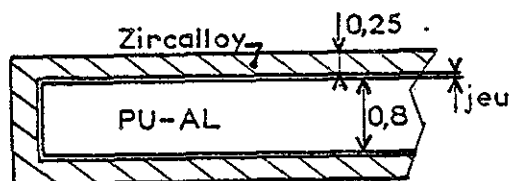
La navette est guidée de manière que l'échantillon reste horizontal, ce qui assure une irradiation symétrique sur les deux faces.

### III - CARACTERISTIQUES DES ECHANTILLONS

Le calorimètre a été conçu pour recevoir des échantillons rectangulaires plans dont les cotes maximales sont :  $l = 20$  x  $L = 55$  x  $e = 1,5$  mm.

La matière fissile est contenue dans un gainage étanche en Zircalloy dont les cotes extérieures sont de quelques 1/10 de mm inférieures aux valeurs ci-dessus.

Dans le cas du Plutonium (Fig.3) l'échantillon est constitué d'un coeur en alliage Pu-Al (0,7 % en poids) à 89 % de  $^{239}\text{Pu}$ . L'épaisseur de Zircalloy sur une grande face est 0,25 mm. Les cotes du coeur sont  $45 \times 16 \times 0,8$  mm, ce qui correspond à un poids de matière fissile voisin de 8 g.

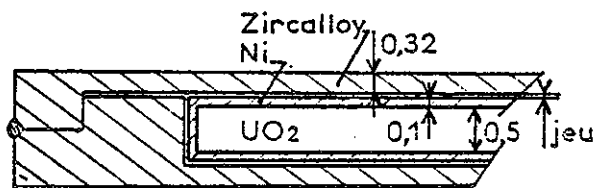


Coupe schématique d'une plaque  
de Plutonium  
(mm)

Fig.3

Dans le cas de  $^{233}\text{U}$  (Fig. 4), on a environ 1,9 g de matière fissile sous forme oxyde par plaquette, répartie en 12 pastilles de 7 mm de diamètre, gainées de Nickel ( $e = 0,1$  mm) et logées dans un boîtier de Zircaloy 2 dont l'épaisseur sur une grande face est 0,32 mm.

Les principales impuretés de  $^{233}\text{U}$  sont  $^{232}\text{U}$  dont la teneur est  $< 10^{-5} \%$  et environ 30 ppm de  $^{232}\text{Th}$ .



Coupe schématique d'une plaquette  
d'Uranium  
(mm)

Fig.4

#### IV - INTERPRETATION DES MESURES

##### IV.1 - Principe

La cellule calorimétrique présentant une inertie thermique caractérisée en première approximation, par une constante de temps  $\tau_c$ , le signal de sortie du calorimètre pris aux bornes des thermocouples n'est pas proportionnel à la puissance  $E(t)$  injectée, si celle-ci présente des variations importantes sur des intervalles de temps de l'ordre de  $\tau_c$ . Dans ces conditions il est nécessaire de connaître les caractéristiques de transfert de l'appareil.

Par définition, on appellera fonction de transfert  $A(t)$  le signal de sortie correspondant à une puissance  $E(t)$  en échelon unité et réponse percussionnelle le signal de sortie  $A'(t)$  correspondant à une impulsion de chaleur unité :

$$E(t) = \delta(t).$$

Théoriquement la connaissance de l'une des fonctions  $A(t)$  et  $A'(t)$  est suffisante puisque  $A'(t)$  est la dérivée de  $A(t)$ .

Si par exemple on utilise  $A'(t)$  la réponse  $m(t)$  du calorimètre à un signal  $E(t)$  quelconque (mais nul pour  $t < 0$ ), s'écrit :

$$m(t) = \int_0^t E(t-\tau) A'(\tau) d\tau \quad (1)$$

Ainsi qu'il a été dit en § II.3, le signal  $m(t)$  est amplifié et converti en fréquence. Les mesures  $M_k$  se présentent comme des comptages pendant un temps  $T$  fixe, s'achevant à des temps  $t_k$  régulièrement espacés. A un facteur de normalisation près :

$$M(t_k, T) = M_k = \int_{t_k - T}^{t_k} m(u) du \quad (2)$$

Disposant de  $k_M$  mesures  $M_k$  ( $k = 1, 2, \dots, k_M$ ) et connaissant  $A'(t)$ , il s'agit de déterminer  $E(t)$ .

#### IV.2 - Utilisation de somme d'exponentielles

Les équations (1) et (2) prennent une forme commode si les fonctions qui y figurent sont développées sur une base de fonctions simples. Le choix des fonctions exponentielles s'impose ici, si l'on remarque que la puissance résiduelle  $E(t)$  se présente naturellement /3/ comme une somme de contributions de P.F. à variations exponentielles. Nous poserons :

$$E(t) = E_0 + Q \cdot \delta(t) + \sum_{j=1}^n E_j \cdot e^{\nu_j t} \quad t > 0 \quad (3)$$

-  $E_0$  est un terme constant qui dans le cas présent représentera l'émission  $\alpha$  du combustible. Les irradiations effectuées étant de courte durée, ne peuvent affecter de manière sensible la composition de la plaquette. Aussi  $E_0$  a une valeur connue, déterminée par une mesure avant irradiation.

.../...



-  $Q \cdot \delta(t)$ ,  $\delta$  étant la distribution de DIRAC, représente l'injection d'une quantité  $Q$  de chaleur au temps zéro, due à la différence de température résiduelle entre la cellule calorimétrique et la plaquette sortant de l'étage de préstabilisation (§II.2)  $Q$  n'est pas connue a priori.

- La troisième quantité représente la puissance résiduelle absorbée. Le nombre  $n$  de termes est a priori quelconque, mais les  $\nu_j$  sont négatifs.

La réponse percussionnelle  $A'(t)$  se présente de la manière suivante (Fig. 5). Pendant un temps  $t_0$  compté à partir de l'envoi de l'impulsion,  $A'(t)$  est identiquement nul, puis quand l'onde de chaleur atteint les thermocouples,  $A'(t)$  croît rapidement, passe par un maximum, puis décroît en tendant vers 0.  $A(t)$  (Fig. 6) est l'intégrale de  $A'(t)$ . Elle croît de façon monotone à partir du temps  $t_0$  pour atteindre une valeur limite  $A_0$  caractérisant la sensibilité du calorimètre.

Nous poserons, les  $\alpha_i$  étant tous négatifs :

$$\left. \begin{aligned} A'(t) &= 0 && \text{pour } t \leq t_0 \\ A'(t) &= \sum_{i=1}^m A'_i \cdot e^{\alpha_i \cdot t} && t \geq t_0 \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

En reportant les relations (3) et (4) en (1) et (2) on aboutit à l'expression suivante de la mesure au temps  $t_k$  :

$$\left. \begin{aligned} M_k &= E_0 \sum_{i=1}^m \frac{A'_i}{\alpha_i} \left\{ e^{\alpha_i \cdot t_k} \left( \frac{1 - e^{-\alpha_i \cdot T}}{\alpha_i} \right) - T \cdot e^{\alpha_i \cdot t_0} \right\} \\ &+ Q \cdot \sum_{i=1}^n \frac{A'_i}{\alpha_i} e^{\alpha_i \cdot t_k} (1 - e^{\alpha_i \cdot T}) \\ &+ \sum_{j=1}^n E_j \left\{ \sum_{i=1}^m \frac{A_i}{\alpha_i - \nu_j} \cdot e^{\alpha_i \cdot t_k} \cdot \left( \frac{1 - e^{-\alpha_i \cdot T}}{\alpha_i} \right) \right. \\ &\quad \left. - e^{\nu_j \cdot (t_k - t_0)} \cdot \frac{1 - e^{-\nu_j \cdot T}}{\nu_j} \cdot \sum_{i=1}^m \frac{A_i}{\alpha_i - \nu_j} \cdot e^{\alpha_i \cdot t_0} \right\} \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

EXPRESSION DE LA MESURE AU TEMPS  $t_k$

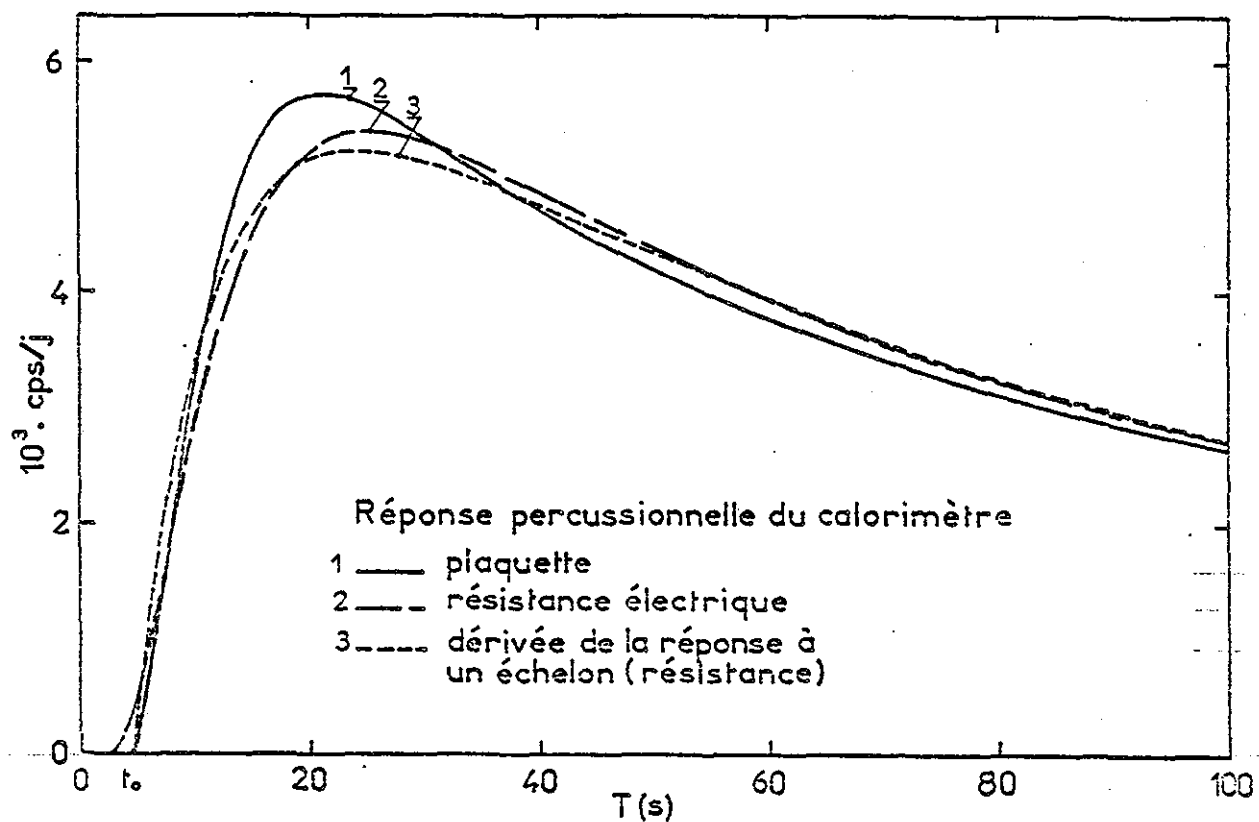


Fig. 5

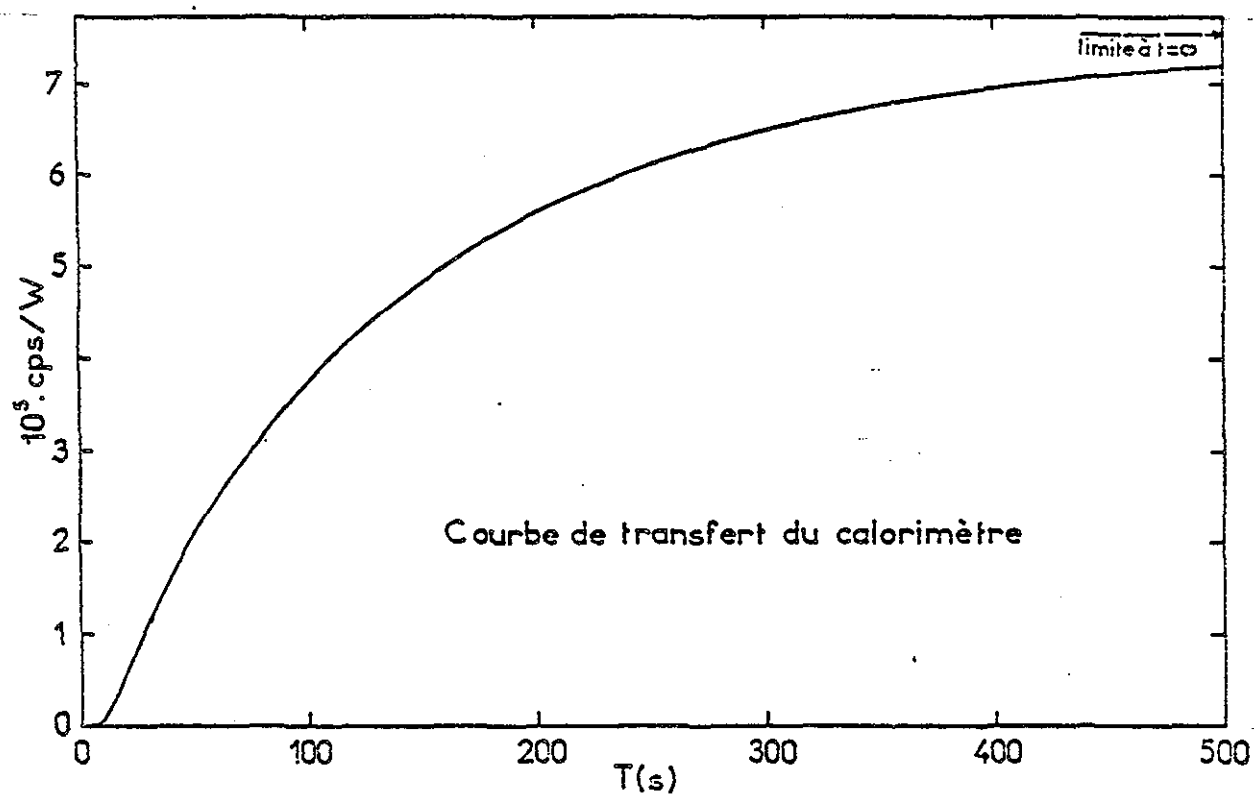


Fig. 6

Ainsi,  $k_M$  mesures ayant été relevées à des temps différents, les coefficients  $t_0$ ,  $T$ ,  $A_i$ ,  $\alpha_i$  ( $i=1,2 \dots m$ ) étant connus, on dispose d'après (5) d'un système surabondant de  $k_M$  équations concernant les inconnues  $Q$ ,  $E_j$ ,  $v_j$  ( $j=1,2 \dots n$ ).

La méthode utilisée pour résoudre ce système est un ajustement par moindres carrés sur le  $X^2$  qui est défini comme la somme des carrés des écarts entre les  $M_k$  et les valeurs calculées des mesures  $M_k^c$ , divisée par la variance de la mesure et par le nombre  $k_M$  de points de mesures /5, 9/. La variance est supposée constante /1, 4/ pour tous les points, soit  $V$  :

$$\text{d'où} \quad X^2 = \frac{1}{V \cdot k_M} \sum_{k=1}^{k_M} (M_k - M_k^c)^2$$

$X^2$  est une fonction de  $n+1$  variables  $Q$ ,  $E_j$ ,  $v_j$  ( $j=1,2 \dots n$ ), le nombre  $n$  lui-même fixant le nombre de termes de la décomposition en sommes exponentielles de  $E(t)$ , n'étant pas déterminé a priori.

#### IV.3 - Courbe de fission élémentaire

Notons  $F(t_r)$  la courbe de fission élémentaire, autrement dit la puissance  $\beta+\gamma$  libérée par les produits de fission un temps  $t_r$  après une fission,  $T_i$  la durée de l'irradiation effectuée à taux de fission  $\tau_F$  constant,  $T_r$  le temps écoulé entre la fin de l'irradiation et l'entrée de la plaquette en cellule de mesure.

Comme le calorimètre est de dimensions finies, une fraction seulement de l'énergie gamma émise est absorbée dans la cellule. Ainsi, pour une fission la puissance absorbée au temps  $t_r$  sera :

$$G(t_r) = \frac{1}{p(t_r)} \cdot F(t_r) \quad (6)$$

Où  $p(t_r)$  est un facteur correctif supérieur à l'unité.

.../...

Pour l'irradiation complète, d'après la définition de E(t) on aura :

$$\sum_{j=1}^n E_j \cdot e^{\nu_j \cdot t} = \tau_F \int_{T_r+t}^{T_r+T_i+t} G(u) du \quad (7)$$

G(t) se décompose directement en somme d'exponentielles (rappelons que  $\nu_j < 0$ )

$$\begin{cases} G(t_r) = \sum_{j=1}^n G_j \cdot e^{\nu_j \cdot t_r} \\ G_j = \nu_j \cdot E_j \cdot (e^{\nu_j \cdot T_i} - 1) \end{cases} \quad (8)$$

Par (9) on peut alors directement déterminer  $F(t_r)$  si on connaît le facteur correctif  $p(t_r)$ . Celui-ci peut s'exprimer en fonction de la probabilité d'absorption gamma dans la cellule du calorimètre.

Soient  $F_\beta(t_r)$  et  $F_\gamma(t_r)$  les énergies  $\beta$  et  $\gamma$  libérées un temps  $t_r$  après une fission:

$$F(t_r) = F_\beta(t_r) + F_\gamma(t_r) \quad (9)$$

Si  $s_\gamma(\epsilon, t_r)$  se représente le nombre de  $\gamma$  d'énergie  $\epsilon$  à  $\epsilon$  près émis au temps  $t_r$ , et  $p_\gamma(\epsilon)$  la probabilité d'absorption à l'énergie  $\epsilon$ .

$$F_\gamma(t_r) = \int_{\epsilon} \epsilon \cdot s_\gamma(\epsilon, t_r) \cdot d\epsilon \quad (10)$$

$$G(t_r) = F_\beta(t_r) + \int_{\epsilon} \epsilon \cdot p_\gamma(\epsilon) \cdot s_\gamma(\epsilon, t_r) \cdot d\epsilon \quad (11)$$

$$p(t_r) = \frac{F_\beta(t_r) + \int_{\epsilon} \epsilon \cdot s_\gamma(\epsilon, t_r) \cdot d\epsilon}{F_\beta(t_r) + \int_{\epsilon} \epsilon \cdot p_\gamma(\epsilon) \cdot s_\gamma(\epsilon, t_r) \cdot d\epsilon} \quad (12)$$

Le calcul de  $p_\gamma(\epsilon)$  a été effectué par DEVILLERS à l'aide du code DOT II /6/ en géométrie (r, z) pour treize bandes d'énergies données en tableau I.

A partir des estimations de  $s_\gamma(\epsilon, t_r)$ ,  $F_\beta(t_r)$  et  $F_\gamma(t_r)$  tirées de la bande PICFEE /7/ nous avons obtenu  $p(t_r)$  pour différents temps de refroidissement.

.../...

Les valeurs sont données en tableau II pour des temps échelonnés de  $10^2$  à  $3 \cdot 10^5$  s. La correction reste très voisine de 10 % dans tous ce domaine avec des oscillations de 1 à 2 % maximum.

TABLEAU I

PROBABILITE D'ABSORPTION  $\gamma$ 

Energie moyenne de la bande $\bar{\epsilon}$	Probabilité $p\gamma(\epsilon)$
8.08	0.7716
7.	0.7619
6.	0.7481
5.	0.7369
4.	0.7232
3.125	0.7128
2.5	0.7226
2.	0.7330
1.5	0.7613
1.	0.8253
0.6283	0.8971
0.4245	0.9406
0.2869	0.9243

TABLEAU II

CORRECTIONS DE FUITE  $\gamma$  POUR  $^{235}\text{U}$  ET  $^{238}\text{Pu}$ 

Temps après la fission $t_r$ (s)	$p(t_r)$	
	$^{239}\text{Pu}$	$^{235}\text{U}$
$10^2$	1,100	1,110
$3 \cdot 10^2$	1,100	1,113
$10^3$	1,101	1,112
$3 \cdot 10^3$	1,117	1,124
$10^4$	1,125	1,127
$3 \cdot 10^4$	1,092	1,095
$10^5$	1,077	1,075
$3 \cdot 10^5$	1,092	1,096

.../...

88130013

## V - ETALONNAGE DU CALORIMETRE

### V.1 - Etalonnage statique

En régime stationnaire la mesure est proportionnelle à la puissance injectée, le coefficient de proportionalité  $A_0$  caractérisant la sensibilité du calorimètre.

L'étude a été faite à l'aide d'une canne d'étalonnage électrique par effet Joule présentant une fuite thermique de l'ordre de  $10^{-4}$  fois la puissance injectée. Les résultats obtenus sont en excellent accord avec les résultats donnés en /1/ pour le même appareil.

Pour la gamme de mesures utilisée tout au long de ces expériences nous avons pris :

$$\left\{ \begin{array}{l} A_0 = 7,568 \cdot 10^5 \text{ cps/W} \\ \text{avec } \Delta A_0/A_0 = 10^{-3} \end{array} \right.$$

### V.2 - Etalonnage dynamique

Les caractéristiques du calorimètre en régime transitoire dépendent des propriétés thermiques des échantillons mesurés, ainsi que du contact thermique entre l'échantillon et la cellule. Aussi la détermination précise des caractéristiques du transfert est-elle délicate à obtenir.

La figure N° 5 montre trois formes de réponses percussionnelles observées :

1 - La courbe en trait plein a été obtenue à l'aide d'une plaquette d'acier inox de dimensions semblables aux plaquettes fissiles et de capacité calorifique voisine. Cette plaquette portée à une température de l'ordre de 50 °C a séjourné quelques secondes dans l'étage de préstabilisation avant de pénétrer dans la cellule de mesures.

L'énergie libérée n'étant pas connue, la norme a été fixée de manière que la surface totale soit égale à  $A_0$ .

.../...

- 2 - La courbe en tirets représente le signal obtenu en injectant dans la canne d'étalonnage du calorimètre une impulsion calibrée d'énergie électrique (durée = 1 s).
- 3 - Enfin la courbe en pointillé représente la dérivée de la courbe de transfert obtenue en injectant dans la canne d'étalonnage une puissance électrique calibrée constante.

La différence de forme entre les deux premières courbes (plaquette et résistance) traduit une différence entre les propriétés thermiques des ensembles cellule-plaquette et cellule-canne étalon. On observera simultanément un écart important entre les  $t_0$  (4,54 et 2,1 secondes respectivement).

Les deuxième et troisième courbes (résistance et dérivée) sont confondues au-delà de 70 s. Les écarts observés en deçà sont en partie dus aux difficultés de calcul de la dérivée dans une zone où le signal est rapidement variable, et en partie à des modifications de contact thermique entre cellule et canne, celle-ci ayant été déplacée entre les deux expériences. Ici aussi les  $t_0$  diffèrent.

Comme la configuration la plus représentative de l'expérience réelle est celle où la plaquette d'acier inox est utilisée, c'est avec la courbe correspondante que nous avons représenté  $A'(t)$ . La décomposition en somme d'exponentielles de cette courbe a donné les valeurs portées en Tableau III avec les notations :

T A B L E A U III

Décomposition de la réponse percussive en sommes d'exponentielles

i	m = 6	
	$A'_i (J^{-1}s^{-1})$	$\alpha_i (s^{-1})$
1	$6,964 \cdot 10^4$	$- 2,959 \cdot 10^{-1}$
2	$- 7,380 \cdot 10^4$	$- 2,185 \cdot 10^{-1}$
3	$4,137 \cdot 10^3$	$- 6,072 \cdot 10^{-2}$
4	$1,408 \cdot 10^3$	$- 1,680 \cdot 10^{-2}$
5	$3,042 \cdot 10^3$	$- 8,969 \cdot 10^{-3}$
6	$1,866 \cdot 10^3$	$- 5,004 \cdot 10^{-3}$

$$A'(t) = \sum_{i=1}^m A'_i \cdot e^{\alpha_i \cdot t}$$

$t \geq t_0$

.../...

8813001E

L'incertitude relative à chacun de ces coefficients est difficile à estimer compte tenu des remarques faites précédemment. Si la décomposition en exponentielles est très précise en elle-même, c'est le caractère non reproductif des contacts thermiques entre échantillon et cellule qui fixera l'erreur.

Seule l'intégrale de cette courbe est bien connue puisque c'est précisément  $A_0$

$$A_0 = \sum_{i=1}^m \frac{A'_i}{\alpha_i} e^{-\alpha_i t_0}$$

L'influence de la forme de la réponse percussionnelle utilisée a été étudiée sur plusieurs dépouillements.

#### VI - ETALONNAGE DE LA CHAÎNE DE SPECTROMÉTRIE GAMMA

Ayant choisi le Lanthane pour mesurer les taux de fission des plaquettes irradiées, pour des raisons exposées en § VII, nous avons déterminé l'efficacité du cristal Ge (Li) du spectromètre  $\gamma$  pour les raies principales de ce corps.

Ne disposant pas de sources de Ba(La) d'activité connue, nous avons utilisé des sources non étalonnées de  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{140}\text{La}$ , et une source étalonnée de  $^{60}\text{Co}$ . Les données utiles concernant les nucléides sont tirées de /11, 12, 13, 14/ ce qui conduit à utiliser pour  $^{140}\text{La}$  :

$$^{140}\text{La} \begin{cases} T_{1/2} = 40,27 \pm 0,05 \text{ jours} \\ I_{\gamma} \begin{cases} 1595,6 \text{ keV} = 95,33 \pm 0,16 \% \\ 815,8 \text{ keV} = 22,7 \pm 0,7 \% \end{cases} \end{cases}$$

#### VII - MESURE DU TAUX DE FISSION DES PLAQUETTES

Après un refroidissement variable selon la durée de l'irradiation de manière à laisser décroître l'activité des produits de fission de courte durée de vie, les plaquettes ont été analysées en spectrométrie gamma.

C'est la raie à 1596 keV du Lanthane qui a servi pour  $^{239}\text{Pu}$  et la raie à 816 keV pour  $^{233}\text{U}$ , l'autre était perturbée par un pic de double échappement du  $^{208}\text{Tl}$  descendant de  $^{228}\text{Th}$  lui-même issu de  $^{232}\text{U}$  contenu en faible proportion ( $<10^{-5}$ ) dans  $^{233}\text{U}$ .

.../...

88130016



L'utilisation de  $^{95}\text{Zr}$  et  $^{137}\text{Cs}$  n'a pas été possible comme moniteurs de fissions, ni pour  $^{233}\text{U}$  car la résolution du spectromètre n'était pas suffisante pour séparer leurs raies de celle du Thorium, ni pour  $^{239}\text{Pu}$ , car le Plutonium utilisé provient du retraitement d'un combustible très irradié et il contient une proportion variable selon l'échantillon de ces produits de fission incomplètement éliminés.

Le Lanthane dont l'activité est mesurée dans ces conditions provient de la désintégration du  $^{140}\text{Ba}$  pour lequel le rendement  $Y$  de fission est /8/ :

	6,43 %	avec	$^{233}\text{U}$
	5,57 %	avec	$^{239}\text{Pu}$

La spectrométrie gamma permet de déterminer le nombre d'atomes  $N_{\text{Ba}}$  de  $^{140}\text{Ba}$  créés pendant l'irradiation de durée  $T_i$ , le taux de fission  $\tau_F$  s'en déduit :

$$\tau_F = \frac{N_{\text{Ba}}}{Y \cdot T_i}$$

Les plaquettes étant composées d'une masse relativement importante de matière fissile et de plus gainées, il a fallu tenir compte de l'autoabsorption gamma qui dans les 2 cas s'est révélée voisine de 4 %.

### VIII - RESULTATS

Une série d'irradiations de durées s'échelonnant de 50 à 25 000 s a été réalisée avec chacun des combustibles. Les taux de fission ont varié d'une irradiation à l'autre mais sont restés assez groupés. Ainsi pour  $^{239}\text{Pu}$  les valeurs extrêmes de  $\tau_F$  sont  $1,01 \cdot 10^{11}$  et  $3,7 \cdot 10^{11}$  fission / s tandis que pour  $^{233}\text{U}$   $\tau_F$  est resté dans la fourchette  $0,7 \cdot 10^{11}$  à  $2 \cdot 10^{11}$  fission / s.

Les dépouillements ont été faits en utilisant systématiquement la réponse percussionnelle du calorimètre dont la décomposition en sommes d'exponentielles est donnée en tableau III.

On trouvera dans les colonnes marquées F du tableau IV les valeurs mesurées en MeV / s de l'énergie  $\beta + \gamma$  dégagée par la fission élémentaire.

.../...

88130017

Ces valeurs sont déduites de l'ensemble des résultats relatifs aux diverses irradiations par une pondération tenant compte du fait, que la détermination de l'énergie libérée un temps court après la fission sera meilleure avec une irradiation de courte durée qu'avec une irradiation de longue durée, où la contribution d'un trop large domaine de la courbe de fission élémentaire se fera sentir. Le raisonnement s'applique réciproquement pour les temps longs.

Les colonnes  $\Delta F$  donnent la dispersion observée sur F en %. Elles tiennent compte des erreurs de dépouillement dues à la minimisation, de l'influence de la forme de la réponse percussionnelle du calorimètre, de l'incertitude statistique des mesures de taux de fission, des fluctuations éventuelles de la réponse du calorimètre. Elles ne tiennent pas compte des erreurs supplémentaires provenant des étalonnages du calorimètre et de la chaîne de spectrométrie  $\gamma$ , des coefficients d'autoabsorption  $\gamma$  des plaquettes, des estimations de fuite  $\gamma$  dans le calorimètre, des rendements de fission pour le Baryum - Lanthane.

Pour ce qui concerne :

- L'erreur sur les rendements de fission du Baryum :

D'après /8/ les erreurs seraient pour $^{239}\text{Pu}$ .....	2	%
pour $^{233}\text{U}$ .....	0,7	%

En fait d'autres auteurs /10/ signalent pour  $^{239}\text{Pu}$  un rendement de fission du Ba de 5,25 % à 2,9 % près, en désaccord de 6 % avec la valeur issue de /8/ ce qui montre la difficulté de chiffrer l'incertitude.

- L'erreur sur les intensités des raies  $\gamma$  du Lanthane

D'après /13/ on a pour les raies 1,596 MeV .....	0,5	%
0,816 MeV .....	3,5	%

- L'erreur sur l'étalonnage du spectromètre Ge(Li) :

Elle résulte de la précision de la source étalon de Cobalt utilisée, des fluctuations statistiques sur les comptages, des intensités de raies  $\gamma$ .

Globalement on l'estime à ..... 2,5 %

.../...

Finalemment les erreurs systématiques peuvent entraîner une incertitude de 6,3 % pour  $^{239}\text{Pu}$  et 8 % pour  $^{233}\text{U}$  sans tenir compte d'écartés éventuels importants sur les rendements de fission, fonctions de la source utilisée.

Les erreurs expérimentales quant à elles, entraînent une incertitude de l'ordre de 10 % à 70 s de temps de refroidissement, décroissant régulièrement jusqu'à environ 2 à 3 % au-delà de 500 s.

## IX - DISCUSSIONS

Nous venons de distinguer deux catégories d'erreurs, celles qui sont dues à la méthode de dépouillement, à la dispersion statistique dans les mesures de taux de fission, aux fluctuations de la réponse du calorimètre, et les erreurs systématiques sur les étalonnages.

A la première catégorie correspondent les valeurs de  $\Delta F$  portées en tableau IV. On voit qu'elles sont importantes surtout pour les premiers temps de refroidissement. Jusqu'à 200 à 300 s l'effet est dû essentiellement à l'influence du choc thermique initial lorsque la plaquette pénètre dans la cellule du calorimètre. Au-delà de 300 s n'interviennent pratiquement que les erreurs statistiques sur les mesures de taux de fission sauf pour les temps longs vers  $2 \cdot 10^4$  s où les fluctuations dans le bruit de fond du calorimètre jouent également un rôle.

La méthode de minimisation par sommes d'exponentielles n'introduit pas d'erreur supplémentaire appréciable.

Dans la deuxième catégorie d'erreurs nous ferons entrer :

- L'erreur sur l'étalonnage statique du calorimètre : sa valeur est donnée en paragraphe VI soit ..... 0,1 %.

.../...

- L'erreur sur les corrections de fuites : les fuites sont déduites d'un calcul de propagation  $\gamma$  et d'estimations des spectres  $\gamma$  des P.F. et de l'énergie totale  $\beta$  pouvant entraîner une incertitude globale de 10 % . Comme ces fuites représentent 10 % seulement de l'énergie  $\beta + \gamma$  l'erreur due aux coefficients de correction peut être à estimer à ... 1 %

- L'erreur sur les coefficients d'autosorption  $\gamma$  : Il dépend essentiellement de la précision avec laquelle on connaît les coefficients d'absorption d'énergie  $\gamma$ , soit 2 à 3 %, les caractéristiques géométriques des échantillons étant suffisamment bien connues. L'erreur finale ne doit pas excéder ..... 0,2 %

Le tableau V et les figures 7 et 8 résument cette discussion. Les erreurs qui sont indiquées sont la somme des erreurs aléatoires et systématiques.

La comparaison avec  $^{235}\text{U}$  tableau V et Figure N° 9 , tirés de /4/, montre une différence importante du niveau des erreurs. Elle peut provenir, soit d'une dégradation de l'électronique de mesures ou de la pile thermoélectrique entre les campagnes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{233}\text{U}$ , soit d'une meilleure réalisation des plaquettes de  $^{235}\text{U}$  permettant un meilleur contact thermique avec la cellule du calorimètre.

Si les erreurs systématiques restent du même ordre, notre étude fait ressortir une forte influence d'erreurs aléatoires, essentiellement liées au choc thermique initial, non précisées en /4/.

## XI - CONCLUSIONS

Par un ensemble de mesures calorimétriques nous avons déterminé la puissance résiduelle  $\beta$  et  $\gamma$  due à une fission thermique de  $^{233}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$  pour des temps de refroidissement compris entre 60 et  $10^5$  secondes. L'ensemble des mesures présentées montre que la technique expérimentale utilisée est d'une précision convenable,  $\pm 10$  %, sauf pour les temps de refroidissement inférieurs à 200 s où interviennent des erreurs aléatoires importantes.

.../...

88130020

Les erreurs systématiques sont dues aux données nucléaires des produits de fission utilisés pour mesurer le taux de fission des échantillons soit, les rendements de fission, les branchements et intensités de raies  $\gamma$ .

Elles sont supérieures aux erreurs d'étalonnage en énergie du calorimètre, et aux erreurs aléatoires de mesure dans la gamme des temps derefroidissement supérieurs à 200 s.

Les résultats obtenus précédemment pour  $^{235}\text{U}$  par LOTT sont regroupés avec les nôtres, l'ensemble présentant une bonne cohérence.

ooo 0 ooo

88130021

- B I B L I O G R A P H I E -  
=====

- / 1 / F. DUFRECHE, G. LHIAUBET, M. LOTT  
B.I.S.T. NO 181 - Mai 1973
- / 2 / E. CALVET, H. PRAT  
Microcalorimètrie Ed. MASSON PARIS (1956)
- / 3 / R. DETOUREIL  
Programme de calcul de l'activité des produits de fission  
C.E.A. N° 824 (Octobre 1967)
- / 4 / G. LHIAUBET, M. LOTT, F. DUFRECHE, R. DETOUREIL  
Puissance résiduelle totale émise par les produits de fission thermique  
de  $^{235}\text{U}$ .  
J N E, 27 (1973) pp 597-605
- / 5 / ARNDT R.A., MACGREGOR M.N.  
Methods in computational physic  
(Vol 6, NUCLEAR PHYSIC) ACADEMIC PRESS
- / 6 / MYNATT F.R. (1967)  
A user's Manual for DOT, R - 1964
- / 7 / PICFEE 2 Programme de calcul de la concentration, de l'activité des  
produits de fission et de la puissance résiduelle dans un combustible  
irradié . (Communication privée).
- / 8 / MEEK M.E., RIDER B.F.  
NEDO - 12154. 1 74 NED 6, class 1, Janvier 26, 1974
- / 9 / ANGOT  
Suppléments de Mathématiques  
Collection du C.N.E.T.

.../...

88130020

- / 10 / LARSEN R.P., DUDEY N.D., HEINRICH R.R., OLDHAN R.D.  
ARMANI R.J., POPECK R.S., GOLD R.  
Nuclear Science and Engineering 54 263 - 272 (1974)
- / 11 / J. MOREL  
Etudes des différents problèmes posés par l'étalonnage précis  
d'un spectromètre  $\gamma$   
C.E.A. R - 4656 Janvier 1975
- / 12 / C.M. LEDERER  
Table of isotopes (1968)
- / 13 / L.D. Mc ISAAC  
A.N.C.R. 1088 (1972) 387.
- / 14 / J. BLACHOT, C. DEVILLERS, R. DE TOUREIL, B. NIMAL, Ch. FICHE, J.P. NOEL  
Bibliothèque de données nucléaires relatives aux produits de fission  
(4ème édition)  
C.E.A. N-1822

ooo O ooo

88130025

TABLEAU IV

Energie  $\beta + \gamma$  libérée par une fission et dispersion expérimentale

TEMPS DE REFROIDISSEMENT (s)	Pu <sup>239</sup>		U <sup>233</sup>	
	F (MeV/s)	$\Delta F$ (%)	F (MeV/s)	$\Delta F$ (%)
50	1,94 $10^{-2}$	8	-	-
60	-	-	1,52 $10^{-2}$	13
70	1,50 $10^{-2}$	6,5	1,33 $10^{-2}$	10
100	1,06 $10^{-2}$	5,3	9,33 $10^{-3}$	7
150	6,68 $10^{-3}$	4,5	6,04 $10^{-3}$	6
200	4,88 $10^{-3}$	3,5	4,42 $10^{-3}$	5
300	3,12 $10^{-3}$	3	2,84 $10^{-3}$	4,5
500	1,89 $10^{-3}$	2,5	1,69 $10^{-3}$	3
700	1,40 $10^{-3}$	2	1,23 $10^{-3}$	3
1000	1,01 $10^{-3}$	2	8,80 $10^{-4}$	2,5
1500	6,73 $10^{-4}$	2	5,92 $10^{-4}$	2,5
2000	4,91 $10^{-4}$	2	4,36 $10^{-4}$	2,3
3000	2,99 $10^{-4}$	2	2,73 $10^{-4}$	2
5000	1,46 $10^{-4}$	2	1,43 $10^{-4}$	2
7000	8,82 $10^{-5}$	2	9,36 $10^{-5}$	2
10000	5,31 $10^{-5}$	2	5,97 $10^{-5}$	2
15000	2,96 $10^{-5}$	2	3,52 $10^{-5}$	2,5
20000	1,97 $10^{-5}$	2	2,42 $10^{-5}$	3
30000	1,18 $10^{-5}$	2	1,40 $10^{-5}$	3
50000	6,81 $10^{-6}$	2	7,15 $10^{-6}$	3,5
70000	4,42 $10^{-6}$	2	4,47 $10^{-6}$	4
100000	2,82 $10^{-6}$	2	2,50 $10^{-6}$	4

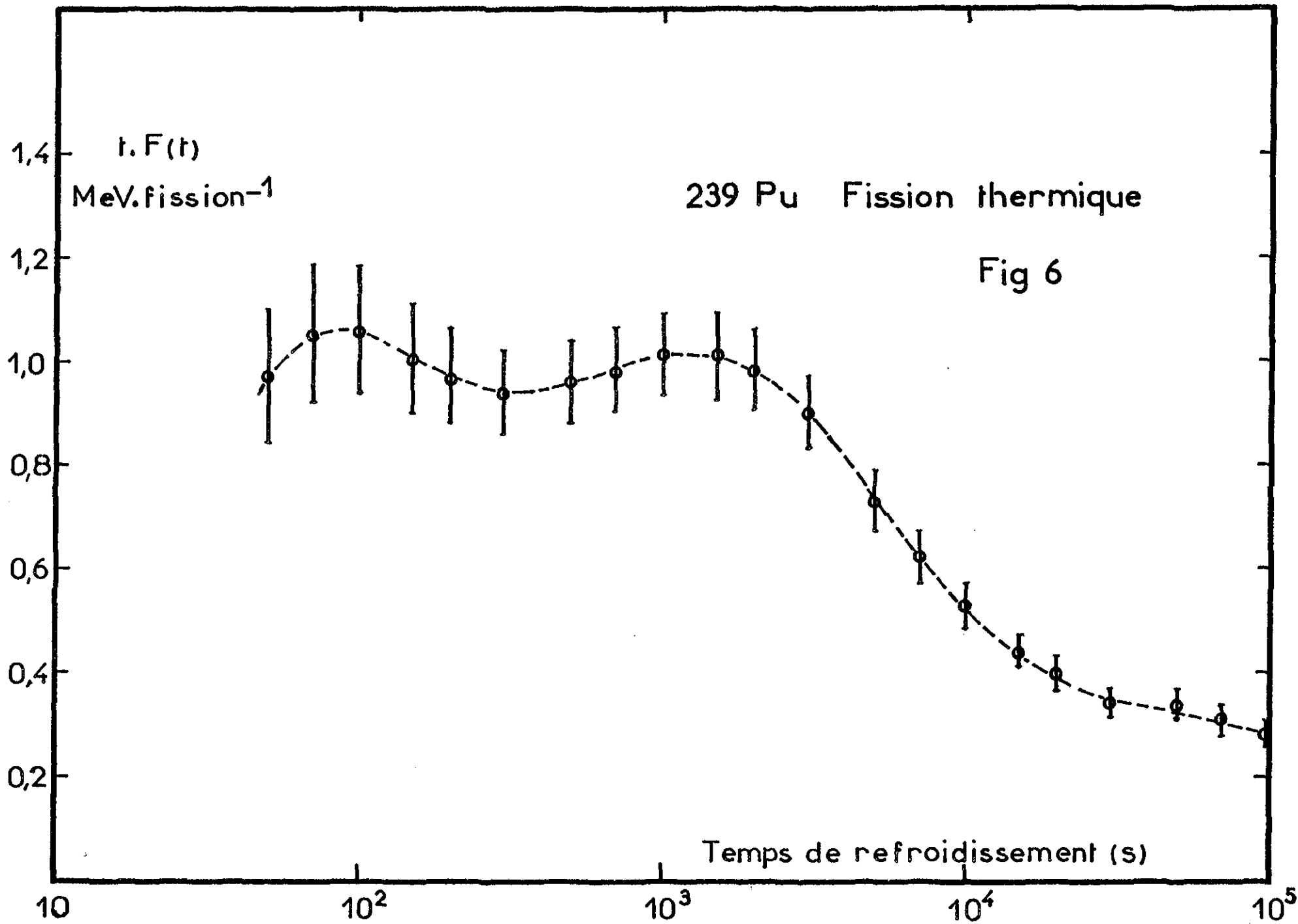


$t_r$ SECONDES	Pu <sup>239</sup>		U <sup>233</sup>		U <sup>235</sup> d'après /4/	
	MeV . s <sup>-1</sup>	%	MeV . s <sup>-1</sup>	%	MeV . s <sup>-1</sup>	%
50	1,94	10 <sup>-2</sup>	14	-	-	-
60	-	-	-	1,52	10 <sup>-3</sup>	25
70	1,50	10 <sup>-2</sup>	13	1,33	10 <sup>-2</sup>	21
100	1,06	10 <sup>-2</sup>	12	9,33	10 <sup>-3</sup>	18
150	6,68	10 <sup>-3</sup>	11	6,04	-	15
200	4,88	-	10	4,42	-	13
300	3,12	-	9	2,84	-	12
500	1,89	-	9	1,69	-	11
700	1,40	-	8	1,23	-	11
1000	1,01	-	8	8,80	10 <sup>-4</sup>	11
1500	6,73	10 <sup>-4</sup>	8	5,92	-	11
2000	4,91	-	8	4,36	-	10
3000	2,99	-	8	2,73	-	10
5000	1,46	-	8	1,43	-	10
7000	8,82	10 <sup>-5</sup>	8	9,36	10 <sup>-5</sup>	10
10000	5,31	-	8	5,97	-	11
15000	2,96	-	8	3,52	-	11
20000	1,97	-	8	2,42	-	11
30000	1,18	-	8	1,40	-	11
50000	6,81	10 <sup>-6</sup>	8	7,15	10 <sup>-6</sup>	12
70000	4,42	-	8	4,47	-	13
100000	2,82	-	8	2,50	-	13

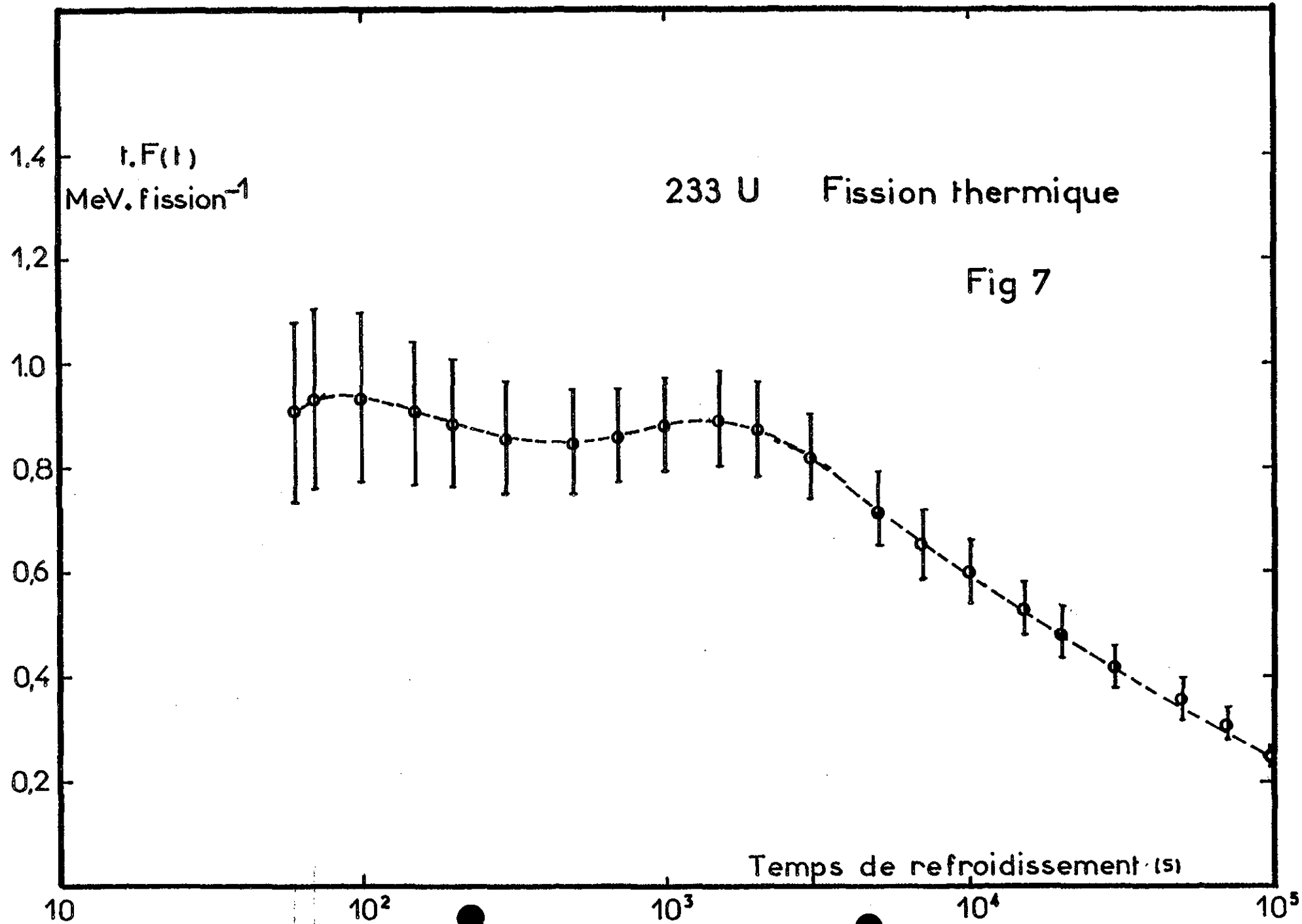
TABLEAU V

Energie totale  $\beta + \gamma$  libérée par une fission et erreurs totales estimées  
(Voir texte)

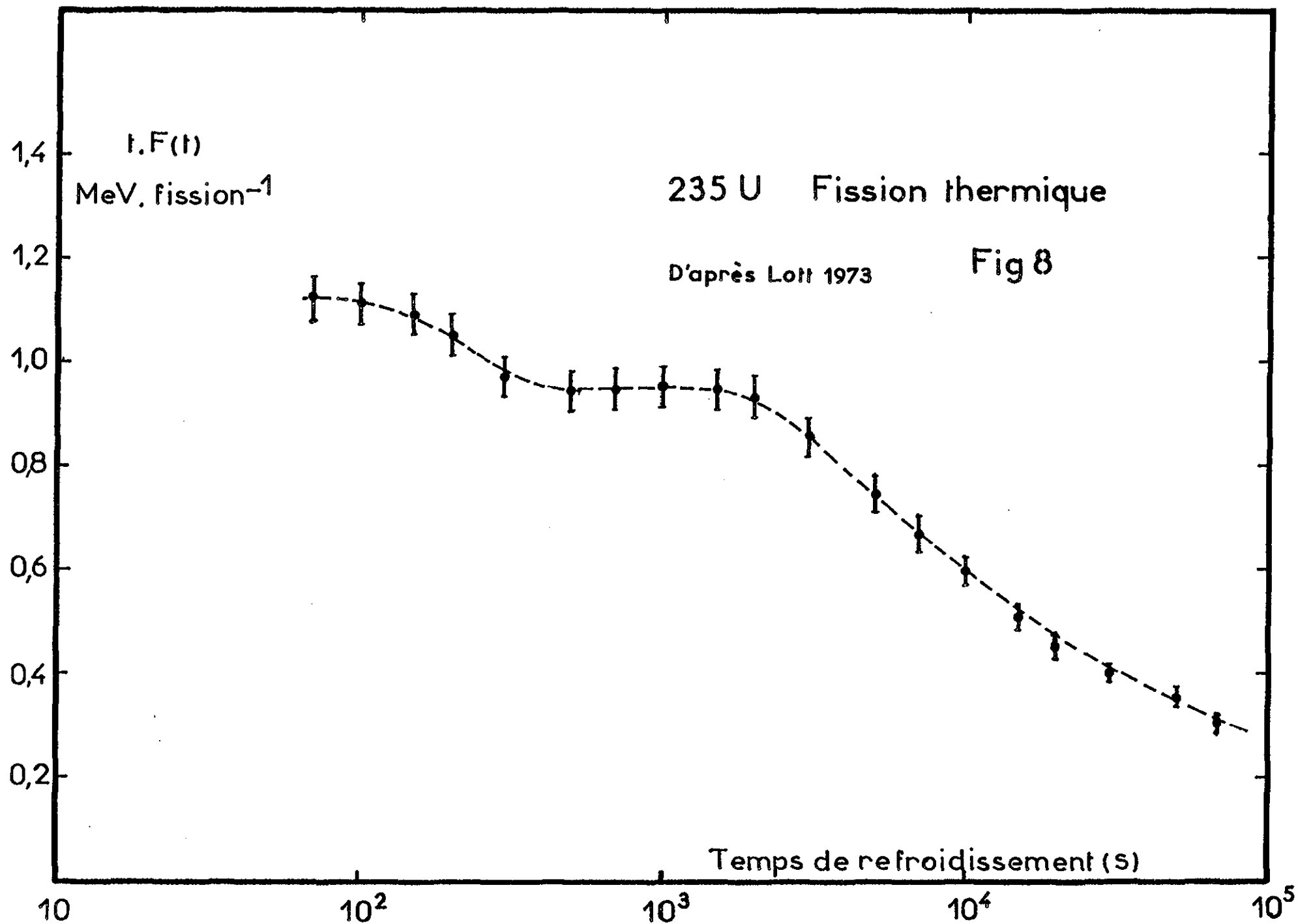
88130025



88130021



88130027



88131002