

BALESTIC F.

Rapport C.E.A. n° 671

Etude du rayonnement γ des barres d'uranium en cours de désactivation.

Sommaire. - On rappelle sans démonstration les formules classiques donnant les activités γ des produits de fission contenus dans une barre d'uranium après défournement. La connaissance de ces activités permet par la méthode proposée de passer aux intensités d'ionisation en un point extérieur à la barre et d'établir ainsi des diagrammes de rayonnement γ .

Les différents paramètres introduits dans le calcul sont d'ordre géométrique (dimensions des barres et coordonnées du point considéré) d'ordre énergétique (puissance à laquelle la barre a été irradiée) et fonction du temps (durée d'irradiation et de désactivation). Un exemple numérique fait suite à la démonstration des formules générales. Des mesures de flux γ effectuées au puits de désactivation de P2 (pile de Saclay) fixent le degré d'approximation de la méthode.

En conclusion, on suggère l'utilisation des diagrammes de rayonnement dans l'établissement de projets d'irradiateurs industriels pour les polymérisations radiochimiques ou la conservation des produits alimentaires.

1957

13 pages

BALESTIC F.

C.E.A. Report No 671

Study of γ radiation from uranium rods during deactivation.

Summary. - The classical formulae giving the γ activities of the fission products contained in a uranium rod after unloading from the pile are reviewed without being proved. The knowledge of these activities makes it possible, by means of the method proposed here, to determine the intensities of ionisation at a point outside the rod, and thus to establish γ radiation diagrams.

The different parameters introduced in the calculation are geometric (dimensions of the bars and coordinates of the point considered), energetic (power at which the bar has been irradiated) and temporal (duration of the irradiation and deactivation). A numerical example follows the demonstration of the general formulae. γ flux measurements carried out in the deactivation well of P2 (Saclay pile) define the accuracy of the method.

In conclusion, it is suggested that radiation diagrams be used in (planning the use of) industrial irradiators for radiochemical polymerisation or the preservation of food products.

1957

13 pages

PRÉSIDENCE DU CONSEIL
COMMISSARIAT A
L'ÉNERGIE ATOMIQUE

**ÉTUDE DU RAYONNEMENT γ
DES BARRES D'URANIUM
EN COURS DE DÉSACTIVATION**

par

F. BALESTIC

Rapport CEA n° 671

**CENTRE D'ÉTUDES
NUCLÉAIRES DE SACLAY
SERVICE DE DOCUMENTATION
Boîte postale n° 2 - Gif-sur-Yvette (S.-et-O.)**

Section des Applications des Radioéléments

ETUDE DU RAYONNEMENT γ DES BARRES D'URANIUM
EN COURS DE DESACTIVATION

par

F. BALESTIC

R.87.1090/LG

INTRODUCTION

Le développement rapide pris par les études radiochimiques au cours de ces dernières années, a provoqué une demande accrue de sources intenses de rayonnement γ . Dans la plupart des recherches de γ -chimie appliquée, on utilise actuellement des sources linéaires : barres d'uranium après leur défournement des réacteurs, bâtonnets de cobalt-60 simples ou assemblés en couronne. De nombreux projets d'installations de sources permettant des irradiations à l'échelle industrielle sont en cours d'étude ; ils ont nécessité d'assez longs calculs donnant un ordre de grandeur des flux γ auxquels on peut raisonnablement s'attendre.

C'est une méthode relativement simple pour évaluer le rayonnement γ des sources linéaires qui est proposé dans cet article.

Il y a lieu de rappeler tout d'abord les équations désormais classiques sur les produits de fission.

I - ACTIVITES DES PRODUITS DE FISSION

1° Activité de saturation, en curies, d'un isotope radioactif

$$(1) \quad A_{\infty} = \frac{W \cdot 3,1 \cdot 10^{10} \cdot R}{3,7 \cdot 10^{10}}$$

où W : puissance en watts du réacteur
 R : rendement de fission de l'isotope considéré
1 watt = $3,1 \cdot 10^{10}$ fissions/s
1 curie = $3,7 \cdot 10^{10}$ désintégrations/s

2° Activités après le défournement des barres d'uranium

$$(2) \quad A_{1,t} = A_{\infty} (1 - e^{-\lambda_1 t}) e^{-\lambda_1 t}$$

$$(3) \quad A_{2,t} = A_{\infty} \frac{\lambda_1 \lambda_2}{\lambda_1 - \lambda_2} \left[\frac{1 - e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_2} e^{-\lambda_2 t} - \frac{1 - e^{-\lambda_1 t}}{\lambda_1} e^{-\lambda_1 t} \right]$$

où θ : temps de marche du réacteur
 t : temps de désactivation
 λ_1 : constante radioactive de l'isotope 1

L'équation (2) s'applique pour un isotope pris isolément dans une chaîne de filiation (cas où la période du précurseur est beaucoup plus courte que celle du descendant).

Dans le cas contraire, il y a lieu de tenir compte de l'équilibre de ces deux isotopes et d'utiliser la formule (3) pour le descendant et (2) pour le précurseur.

Pour passer aux activités γ en curies, il convient de multiplier chaque valeur de A_t par le pourcentage d'émission p des photons d'une même énergie.

II - METHODE PROPOSEE POUR PASSER DES ACTIVITES γ A L'INTENSITE D'IONISATION EN UN POINT P EXTERIEUR A UNE BARRE D'URANIUM

Le tableau I donne la liste des différents produits de fission émetteurs de γ [1]. La méthode consiste à assimiler la barre d'uranium à une source linéaire n'émettant que des photons γ_j d'une même énergie et d'un seul isotope i .

On estime que pour une barre de faible diamètre, l'activité se répartit linéairement suivant l'axe et on fait le calcul de l'intensité d'ionisation en négligeant provisoirement l'autoabsorption.

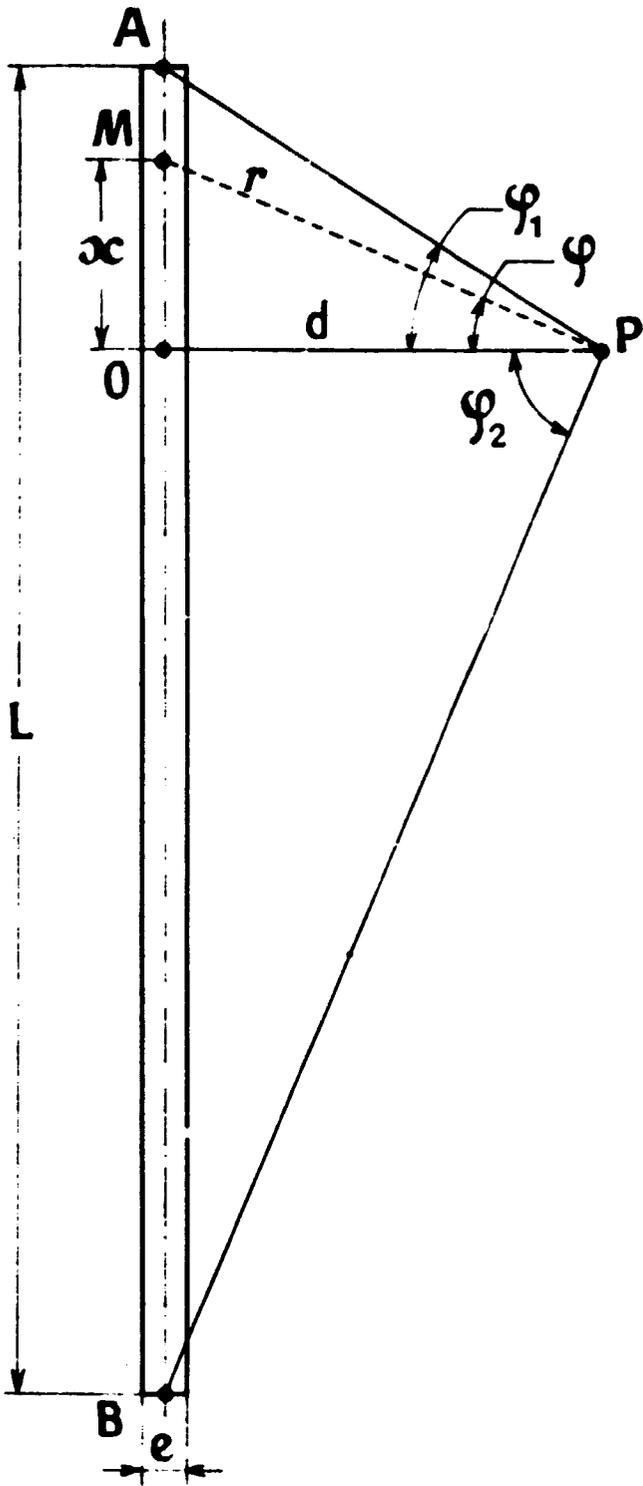
Pour une barre d'uranium de longueur L , de rayon a , le point extérieur P se trouve défini par les paramètres φ_1 , φ_2 , d (fig. 1). Les formules indiquées à titre de rappel donnent, en fonction de la puissance de réacteur, des temps d'irradiation et de désactivation, l'activité en curies des photons γ_j considérés.

L'activité de l'élément dx au point M s'écrit : $\frac{A_{i,t,\gamma_j}}{L} dx$.

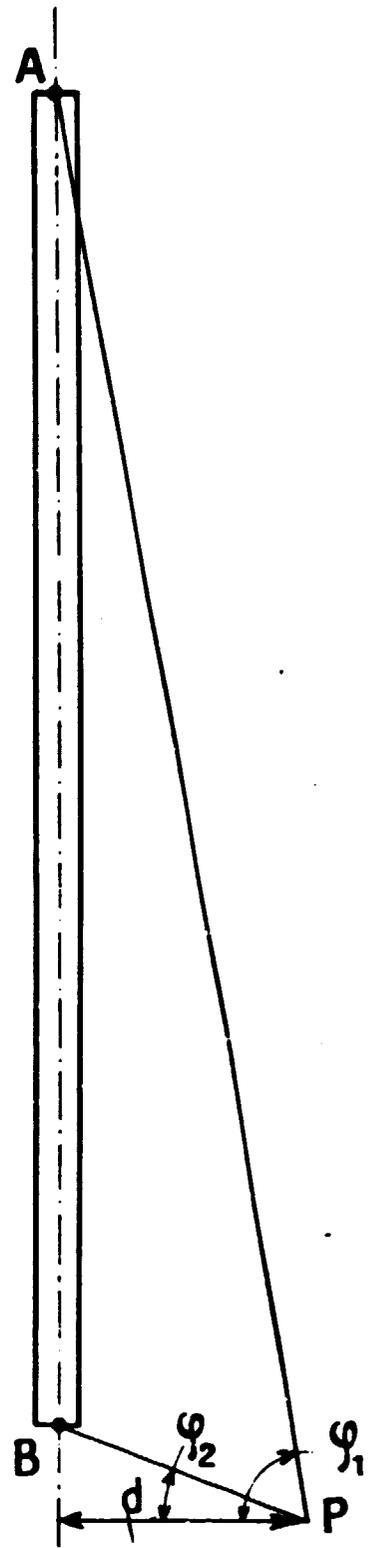
L'intensité d'ionisation en P , en roentgens par unité de temps, due à dx est de la forme :

$$dI_{i,t,\gamma_j} = k_{\gamma_j} \frac{A_{i,t,\gamma_j}}{L} dx \frac{1}{r^2} e^{-\mu r}$$

où μ : coefficient d'absorption linéaire du milieu ambiant
 k_{γ_j} : facteur de conversion que l'on calcule à l'aide de formules qui permettent de passer des activités γ en curies aux intensités d'ionisation à une distance donnée d'une source ponctuelle. Tableau II [2].



- Fig. 1 -



- Fig. 2 -

En intégrant le long de l'axe, il vient :

$$I_{i,t,\gamma_j} = k_{\gamma_j} \frac{A_{i,t,\gamma_j}}{L} \left[\int_0^{OA} \frac{1}{r^2} e^{-\mu r} dx + \int_0^{OB} \frac{1}{r^2} e^{-\mu r} dx \right]$$

or : $d = r \cos \varphi$, $x = d \operatorname{tg} \varphi$, $dx = d \frac{d\varphi}{\cos^2 \varphi}$

pour : $0 < x < OA \rightarrow 0 < \varphi < \varphi_1$

$0 < x < OA \rightarrow 0 < \varphi < \varphi_2$

il vient :

$$(4) \quad I_{i,t,\gamma_j} = k_{\gamma_j} \frac{A_{i,t,\gamma_j}}{L} \frac{1}{d} \left[\int_0^{\varphi_1} e^{-\frac{\mu d}{\cos \varphi}} d\varphi + \int_0^{\varphi_2} e^{-\frac{\mu d}{\cos \varphi}} d\varphi \right]$$

Dans le cas où le rayonnement traverse différentes épaisseurs d_1, d_2, \dots de coefficient d'absorption $\mu_1, \mu_2 \dots$ l'équation précédente s'écrit :

$$(5) \quad I_{i,t,\gamma_j} = k_{\gamma_j} \frac{A_{i,t,\gamma_j}}{L} \frac{1}{D} \left[\int_0^{\varphi_1} e^{-\frac{\sum \mu d}{\cos \varphi}} d\varphi + \int_0^{\varphi_2} e^{-\frac{\sum \mu d}{\cos \varphi}} d\varphi \right]$$

avec $D = d_1 + d_2 \dots$

$$\int_0^{\varphi} e^{-\frac{\sum \mu d}{\cos \varphi}} d\varphi = \mathcal{F}(\sum \mu d, \varphi) \quad \text{intégrale calculée dans les tables de R.M. SIEVERT [3]}$$

Si le pied de la perpendiculaire abaissé de P sur AB est à l'extérieur du segment (fig. 2) l'expression (5) devient :

$$(6) \quad I_{i,t,\gamma_j} = k_{\gamma_j} \frac{A_{i,t,\gamma_j}}{L} \frac{1}{D} \left[\mathcal{F}(\sum \mu d, \varphi_1) - \mathcal{F}(\sum \mu d, \varphi_2) \right]$$

Il convient pour terminer le calcul de modifier la valeur de I_{i,t,γ_j} par une fonction d'autoabsorption $F(\mu a)$ qui varie avec la forme géométrique de la source, son coefficient d'absorption μ et son rayon a . L'intensité d'ionisation mesurable I'_{i,t,γ_j} s'écrit :

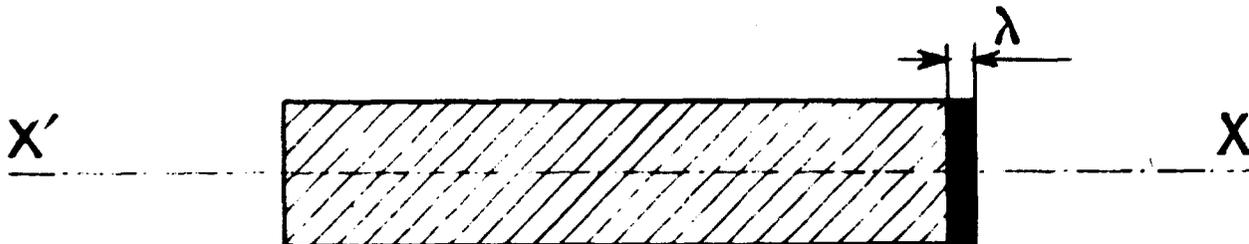
$$(7) \quad I'_{i,t,\gamma_j} = I_{i,t,\gamma_j} \cdot F(\mu a)$$

Pour les différents photons γ_j émis par les i atomes radioactifs, on recommence le même calcul et on fait la somme de leur contribution au point P.

$$(8) \quad J_P, \text{ roentgens/unité de temps} = \sum I_{i,t,\gamma_j}$$

Remarque.-

Une difficulté se présente quand on veut étudier la contribution des photons de faible énergie, 0,15 à 0,25 MeV, en grande partie absorbés par la barre elle-même. On a recours à l'approximation suivante :



- Fig. 3 -

Pour une source épaisse (fig. 3) dont on veut connaître l'intensité d'ionisation en un point de son grand axe suffisamment éloigné, tout se passe comme si seule la face terminale d'épaisseur égale au libre parcours moyen des γ mous émettait des photons.

Dans le cas d'une barre d'uranium, on admet que seul un cylindre creux d'épaisseur $\lambda \sim 1$ mm, émet des γ de 0,2 MeV non autoabsorbés et on applique à nouveau la formule (5) des sources linéaires.

III - EXEMPLE DE CALCUL DE L'INTENSITE D'IONISATION EN UN POINT P DU PLAN EQUATEUR DE LA BARRE D'URANIUM

Cas d'une barre de P2 (pile de Saclay)

Temps d'irradiation θ : 393 jours

Temps de désactivation : 90 jours

Puissance à laquelle une barre a été irradiée : 4 200 W

Ionisation due au zirconium-95

L'activité est donnée par l'équation (2)

$$A_{95Zr,t} = A_{\infty} (1 - e^{-\lambda_{95Zr} \cdot \theta}) e^{-\lambda_{95Zr} \cdot t}$$

$$A_{\infty} = \frac{W \cdot 3,1 \cdot 10^{10} \cdot R}{3,7 \cdot 10^{10}}$$

$$A_{\infty} = \frac{4200 \cdot 3,1 \cdot 10^{10} \cdot 6 \cdot 10^{-2}}{3,7 \cdot 10^{10}} = 210 \text{ curies}$$

$$e^{-\lambda_{95Zr} \cdot \theta} \ll 1, \quad e^{-\lambda_{95Zr} \cdot t} = 0,38$$

$$A_{95Zr, t} = 80 \text{ curies}$$

Pour un photon γ_1 d'énergie 0,73 MeV avec un pourcentage d'émission $p = 98$ pour cent, l'activité γ en curies s'écrit :

$$A_{95Zr, t} \sim 78 \text{ curies}$$

En un point $P(D, \varphi_1, \varphi_2)$ du plan équateur, l'intensité d'ionisation est donnée par la formule :

$$I_{95Zr, t, \gamma} = k_{\gamma} \frac{A_{95Zr, t, \gamma}}{L} \cdot \frac{1}{D} \left[\mathcal{F}(\sum \mu d, \varphi_1) + \mathcal{F}(\mu d, \varphi_2) \right] F(\mu a)$$

où k_{γ} représente le nombre de roentgens par heure dûs aux photons de 0,73 MeV d'une source de 1 curie à 1 centimètre, si on veut exprimer l'intensité en roentgens par heure.

$$k_{\gamma} = 4230 \text{ roentgens/h}$$

$$L = 215 \text{ cm}, \quad D = 10 \text{ cm}$$

$$\varphi_1 = \varphi_2 = 85^\circ \text{C pour un point du plan équateur}$$

$$\sum \mu d \approx 0 \text{ pour l'air}$$

$$\mathcal{F}(\sum \mu d, \varphi_1) = \mathcal{F}(\sum \mu d, \varphi_2) = 1,484$$

$$F(\mu a) = 0,323 \text{ pour une barre d'uranium de diamètre } \phi : 26 \text{ mm}$$

Finalement on trouve :

$$I_{95Zr, 3 \text{ mois}, 0,73 \text{ MeV}, 10 \text{ cm}} = 107 \text{ roentgens/h}$$

Ionisation due au niobium-95

L'activité donnée par l'équation (3) s'écrit :

$$A_{95Nb,t} = A_0 \frac{\lambda_{95Nb} \cdot \lambda_{95Zr}}{\lambda_{95Zr} - \lambda_{95Nb}} \left[\frac{1 - e^{-\lambda_{95Nb} t}}{\lambda_{95Nb}} e^{-\lambda_{95Zr} t} - \frac{1 - e^{-\lambda_{95Zr} t}}{\lambda_{95Zr}} e^{-\lambda_{95Nb} t} \right]$$

$$A_{95Nb,t} = 240 \frac{0,693}{65} \cdot \frac{0,693}{35} \left[\frac{1 - e^{-\frac{0,693 \cdot 90}{35}}}{\frac{0,693}{35}} e^{-\frac{0,693 \cdot 90}{65}} - \frac{1 - e^{-\frac{0,693 \cdot 90}{65}}}{\frac{0,693}{65}} e^{-\frac{0,693 \cdot 90}{35}} \right]$$

$A_{95Nb,t} \sim 133$ curies

Comme le niobium-95 émet un photon de 0,76 MeV par désintégration, il vient :

$$A_{95Nb,t,\gamma} = A_{95Nb,t} = 133 \text{ curies}$$

La suite du calcul est la même que pour le zirconium-95 et finalement on trouve :

$$I'_{95Nb, 3 \text{ mois}, 0,76 \text{ MeV}, 10 \text{ cm}} = 183 \text{ roentgens/h}$$

IV - APPLICATION DE LA METHODE

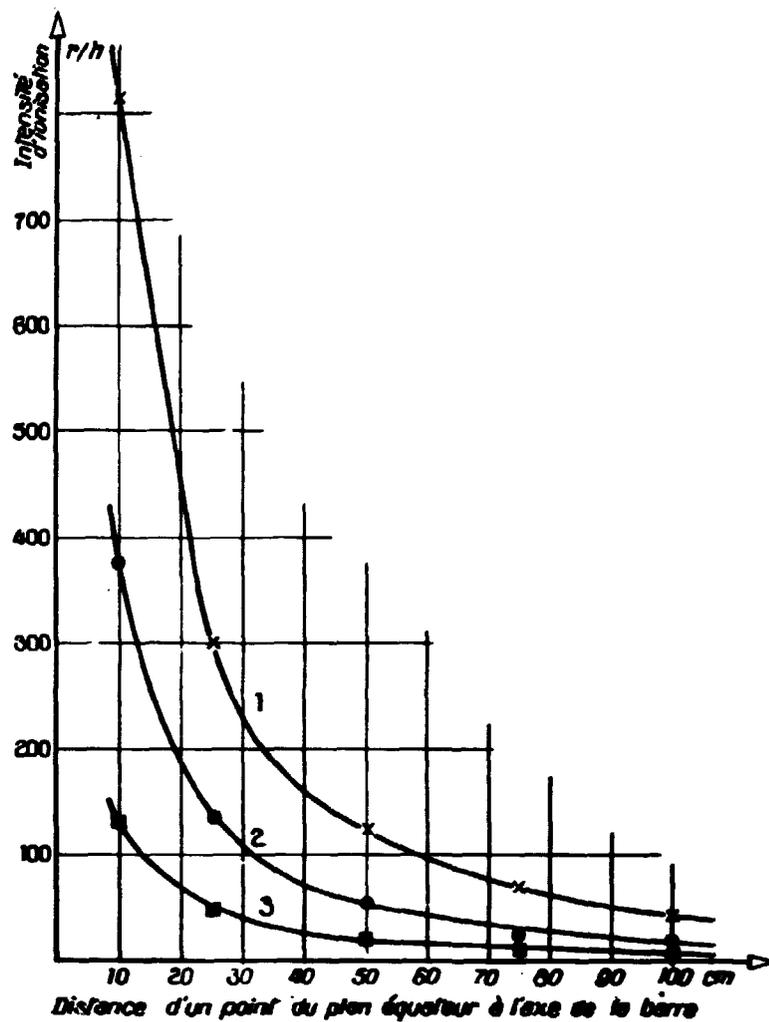
Pour avoir l'intensité d'ionisation en un point donné, il suffit de reprendre les calculs de l'exemple précédent, les appliquant aux différents isotopes responsables de l'ionisation à une période de désactivation considérée. A l'aide des équations (2) et (3), il est facile de déterminer le choix de tels isotopes dont la liste complète figure dans le tableau I.

Le calcul étant fait pour un point quelconque, on peut étudier les iodoses du rayonnement ou la répartition de l'intensité suivant un axe ou un plan particulier.

Cette méthode a servi à établir des diagrammes de rayonnement γ (fig. 4) pour les barres de P2 à des temps variables après leur défournement.

Si l'on connaît "l'âge" de la barre et la puissance à laquelle elle a été irradiée, il suffit de se rapporter au diagramme correspondant pour avoir l'ordre de grandeur de son ionisation en un point déterminé.

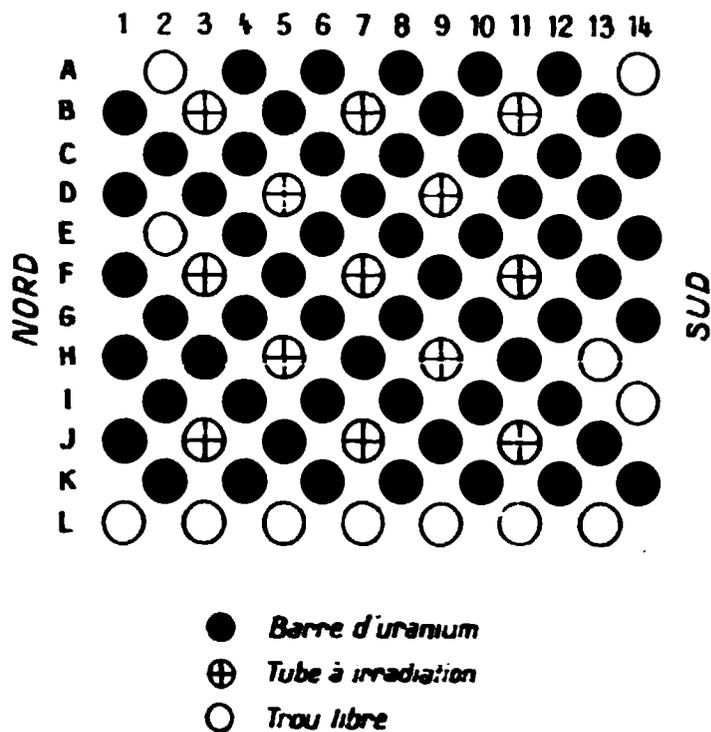
A cet effet des mesures effectuées au puits de désactivation de P2, ont permis de vérifier la validité de la méthode. Dans ce puits, les barres d'uranium



- Fig. 4 -

Rayonnement γ d'une barre de P2 irradiée un an à 4 200 W

- Courbe 1 : un mois après le défournement
- Courbe 2 : trois mois après le défournement
- Courbe 3 : sept mois après le défournement.



- Fig. 5 -

et les tubes à irradiations sont disposés suivant un motif géométrique (fig. 5) et l'on a calculé l'intensité d'ionisation au centre d'un tube, en tenant compte seulement de l'apport des barres les plus proches. Pour le trou F_7 on a considéré:

$$\begin{array}{cccc} E_6 & E_8 & G_6 & G_8 \\ D_7 & F_5 & F_9 & H_7 \\ C_6 & C_8 & E_4 & G_4 & G_{10} & E_{10} & I_6 & I_8 \end{array}$$

Pour une valeur théorique de 1 560 roentgens par heure, on a mesuré 1 680 roentgens/h par le SO_4Fe ($G = 15,45 \pm 0,11$) et 1 800 roentgens/h au stylo dosimètre "Bendix".

Il conviendrait d'ajouter au chiffre théorique l'apport du bremsstrahlung et du rayonnement diffusé sur les barres et les parois du puits, qui sont pratiquement impossibles à évaluer.

Ces résultats mettent en lumière la bonne approximation des formules théoriques. Elles pourraient rendre service dans des calculs d'irradiateurs industriels utilisant des barres irradiées à plus haut flux, pour la conservation des produits alimentaires et les polymérisations radiochimiques.

L'auteur tient à présenter ses remerciements à Mme RHEINICH du Laboratoire de Chimie Physique de la Faculté de Paris et à M. FITOUSSI du Service de Contrôle des Radiations et de Génie radioactif du Commissariat à l'Energie atomique, pour l'aide qu'ils ont bien voulu lui apporter lors de la rédaction de cet article.

Manuscrit reçu le 25 avril 1957

- TABLEAU I -

LISTE DES EMETTEURS γ PRESENTS DANS LES BARRES D'URANIUM
APRES LEUR DEFOURNEMENT

Masses atomiques	Noyaux	Période	Rendement de fission (noyaux/fission)	Pourcentage de désintégration (gamma/noyaux)	Energie gamma (MeV)
91	Sr	9,7 h	0,050	0,40 0,40	1,30 0,61
93	Y	10 h	0,0600	1,00	0,70
95	Zr	55 j	0,0600	0,98 0,02	0,73 0,24
95	Nb	35 j	0,0600	1,00	0,76
97	Nb	60 s	0,0620	1,00	0,75
		74 mn		1,00	0,67
99	Mo	67 h	0,0620	0,13 1,00	0,73 0,14
103	Ru	42 j	0,0370	0,94 1,00	0,49 0,04
106	Rh	30 s	0,0052	0,02 0,01 0,17	2,90 1,25 0,73
				0,17	0,51
127	Sb	93 h	0,00094	0,16	0,72
131	I	8 j	0,0044	0,15 0,79 0,06	0,64 0,36 0,28
	I	8 j	0,0240	0,15 0,79 0,06	0,64 0,36 0,28
132	I	2,4 h	0,0360	0,50 0,50 0,027	0,60 1,40 2,00
133	I	22,4 h	0,0460	0,01 0,05 0,94	1,40 0,85 0,53
135	I	6,68 h	0,056	0,0195 0,0400	2,40 1,80
135	Xe	13,3 mn	0,056	0,30	0,52
	Xe	9,2 h	0,056	1,00	0,25
137	Ba	2,6 mn	0,062	0,92	0,66
140	Ba	12,8 j	0,061	0,40	0,54
140	La	40 h	0,061	0,04 0,96 0,41	2,55 1,65 0,82
				0,45	0,49
				0,25	0,34
141	Ce	30 j	0,570	0,66 0,01	0,15 0,32
143	Ce	33 h	0,0540	1,00	0,20
144	Pr	17,5 mn	0,053	0,02 0,02 0,05	2,60 2,20 1,10
				0,40	0,22
147	Nd	11 j	0,026	0,07 0,94	0,58 0,04
153	Sm	47 h	0,0015	1,00	0,11
				1,00	0,07
156	Ba	15,4 j	0,00013	0,60	2,00

- TABLEAU II -

IONISATION EN ROENTGEN PAR HEURE A 1 METRE D'UNE SOURCE γ
EN FONCTION DES ENERGIES DES PHOTONS EMIS

Photons de 3 à 60 KeV	$I = 57,5 \cdot E^{-1,8}$	E est en KeV
Photons de 0,060 à 1 MeV	$I = 0,58 \cdot E$	E est en MeV
Photons de 1 à 2 MeV	$I = 0,19 + 0,37 E$	E est en MeV
Photons de 2 à 5 MeV	$I = 0,45 + 0,24 E$	E est en MeV

- BIBLIOGRAPHIE -

- [1] MOTEFF J.
Fission Product Decay Gamma Energy Spectrum, APEX 134, 13.
- [2] MARINELLI L.D., QUIMBY E.H. and HINE G.H.
Nucleonics 2, 4, 58, 1948.
- [3] SIEVERT R.M.
Acta Radiologica, 1, 89, 1921.
- [4] MOTEFF J.
Miscellaneous Data for Shielding Calculation, APEX 176, 74.

FIN