

CALORIMETRIE-GAMMAMETRIE ASSOCIEES

En tant que technique de mesure nucléaire

M. T. Tran, P. Barberi, J. Joly et J. C. Rousseau

CE/Saclay, DCC/DPE/SETP, Gif sur Yvette 91191 Cedex, France

Abstract

Calorimetry may be considered like a technique of nuclear measurement. Associated with gammametry, it can insure the management of nuclear material emitting α , β and γ rays.

The gamma spectrometer using a high purity germanium detector can describe the isotopic composition of the sample and the differential calorimeter with thermopile measure the equivalent heating from the nuclear properties of these isotopes.

Keywords: calorimetry, gammametry, nuclear measurement, nuclear raw and waste material handling

Introduction

L'application de la calorimétrie et de la gammamétrie dans le domaine de mesures nucléaires a été largement reconnue de nos jours, notamment pour la comptabilité de matière nucléaire et la gestion de ses déchets, ne souhaitant faire appel qu'à des mesures non destructives, sécurisantes, et non productrices de déchets supplémentaires [1-2]

La finalité de la méthode combinée calorimétrie-gammamétrie est sa facilité de mise en oeuvre en acceptant des structures d'échantillons diverses et mal définies. Il est à noter que les effets de matrice (déchets contaminés) et les impuretés inactives souvent présentes dans les échantillons interfèrent peu les mesures.

Cette méthode est directement applicable aux émetteurs α , γ et β pour lesquels les puissances calorifiques dues au transfert d'énergie de freinage/arrêt sont calculables. Les équivalents chaleur résultant du phénomène de transfert sont tout à fait mesurables avec une bonne précision.

La méthode que nous présentons a fait ses preuves à l'échelle du laboratoire. Elle est directement applicable au bilan matière lié aussi bien au fonctionnement qu'au démantèlement d'une installation nucléaire. La gamme de mesure ciblée se situe entre 0,5 g à 100 g de matière fissile [4]

Le principe physique de la méthode est rappelé ici pour justifier sa particularité en tant que technique de mesure nucléaire.

Principe physique de la méthode [5, 7, 8]

Terme source chaleur à quantifier

Les produits nucléaires sont des produits énergétiques. Cette énergie dégagée par radioactivité est totalement convertible en équivalent chaleur. Elle résulte de l'interaction rayonnement matière, du freinage des particules énergétiques, suivi du transfert d'énergie cinétique en énergie calorifique.

Conversion source nucléaire → source chaleur

Les produits nucléaires sont instables et restituent leurs énergies sous forme de radiation, par émission de particules plus ou moins lourdes, (α , β , η) et des rayonnements électromagnétiques de type gamma qui accompagnent le réarrangement du noyau après émission de particules. Notre terme source, pour la technique présentée, s'accroît essentiellement sur les émissions α dont la gamme d'énergie se situe vers 5 MeV. Particules lourdes équivalent à un noyau hélium (${}^4\text{He}$), son freinage sur simple écran est efficace, la conversion en chaleur est quasi totale.

Radioactivité et puissance calorifique

Les phénomènes qui accompagnent les produits nucléaires sont appelés en général radioactivité. Ces produits sont souvent désignés par radioéléments, radionucléides ou radioisotopes. Ils se situent souvent, suivant le cycle du combustible, dans les combustibles usés, dans toute la chaîne de retraitement de ces combustibles et enfin dans les déchets nucléaires. Ils se présentent sous forme de produits de fission et de transuraniens provenant des réactions de capture neutronique et protonique au cours de la réaction en chaîne de fission de l'uranium.

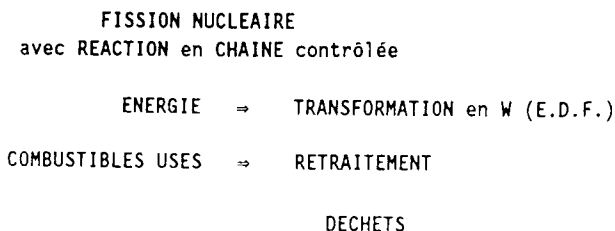


Schéma du cycle du combustible

Chaque radionucléide est caractérisé par:

- sa période en temps de demi-vie ($T_{1/2}$)
- sa constante de désintégration λ
- ses énergies d'émission

A partir de ces données et par la loi de désintégration nucléaire:

$$N = N_0 e^{-\lambda t}$$

On peut calculer les activités spécifiques de tous les radioisotopes présents dans le cycle nucléaire, ce qui s'exprime en Curie par gramme (Ci/g).

La conversion de ces activités nucléaires en équivalents chaleur s'effectue selon la formule:

$$\frac{W}{g} = \frac{Ci}{g} \times 3,7 \cdot 10^{10} \times \frac{Bq}{Ci} \times E \text{ eV} \times 1,6 \cdot 10^{-19} \text{ Joules}$$

L'équivalent chaleur, aussi appelé puissance calorifique, s'exprime en Watt par gramme (W/g).

Quelques valeurs calculées en activités nucléaires et converties en équivalents chaleurs pour des émetteurs α , β et γ sont présentées dans les tableaux 1 et 2 [6, 8].

Tableau 1 Activités et équivalents chaleur des émetteurs α , γ

Isotopes	Nature des émission	Activité / Ci·g ⁻¹	Total émission α / keV	Puissance / mW·g ⁻¹
²³⁵ U	α , γ	2,16 E-06	3824	4,89E-05
²³⁸ U	α , γ	3,30 E-07	4194	8,35E-06
²³⁷ Np	α , γ	7,04E-04	4275	1,78E-02
²³⁸ Pu	α , γ	1,75E+01	5476	5,66E+02
²³⁹ Pu	α , γ	6,13E-02	5138	1,86E+00
²⁴⁰ Pu	α , γ	2,26E-01	5151	6,89E+00
²⁴¹ Pu	α , γ	1,00E+02	0,114	6,75E-02
²⁴² Pu	α , γ	3,81E-03	4866	1,10E-01
²⁴¹ Am	α , γ	3,41E+00	5435	1,10E+02
²⁴³ Am	α , γ	1,98E-01	5249	6,15E+00
²⁴⁴ Cm	α , γ	8,37E+01	5795	2,87E+03
²⁵² Cf	α , γ	5,36E+02	5916	1,88E+01

Tableau 2 Activités et équivalents chaleur des émetteurs β

Nature des émission principales		Activité / $\text{Ci}\cdot\text{g}^{-1}$	Total équivalent calorifique / $\text{mW}\cdot\text{g}^{-1}$	
^{90}Sr	β^-	$1,412\cdot 10^2$	$9,48\cdot 10^{-1}$	
^{90}Y	β^-	$1,412\cdot 10^2$	$9,48\cdot 10^{-1}$	
^{106}Ru	β^-		$25,266\cdot 10^0$	
	γ	$3,305\cdot 10^3$		$28,916\cdot 10^0$
^{106}Rh	β^-		$3,651\cdot 10^0$	
	γ	$3,305\cdot 10^3$	$25,266\cdot 10^0$	$28,916\cdot 10^0$
^{137}Cs	β^-		$3,651\cdot 10^0$	
	γ	$8,659\cdot 10^1$	$9,59\cdot 10^{-2}$	$3,849\cdot 10^{-1}$
^{131}I	X		$2,89\cdot 10^{-1}$	
	β^-		$1,329\cdot 10^2$	
	γ	$1,243\cdot 10^5$		$4,0902\cdot 10^2$
	X		$2,7612\cdot 10^2$	

Principe de mesure et instrumentation

Méthode associée, elle se pratique en sachant bien dissocier les deux tâches respectives.

– L'analyse quantitative est assurée par le calorimètre pour mesurer l'équivalent total et exact de la matière nucléaire présente dans l'échantillon.

Elle utilise un calorimètre différentiel à thermopile d'un volume disponible d'un litre avec une sensibilité d'environ $15 \mu\text{V}/\text{mW}$ dissipé dans l'une des cellules (Fig. 1). Son fonctionnement est isotherme entre 25 et 80°C . De construc-

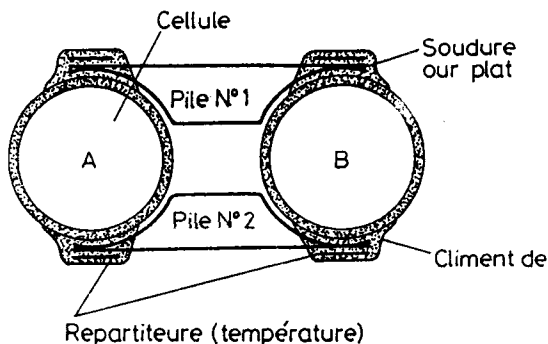


Fig. 1 Schéma de principe du calorimètre

tion inox et aluminium, il peut accepter des charges de plutonium allant du gramme jusqu'aux kilogrammes. La durée d'analyse varie entre 4 heures et 24 heures avec des masses décroissantes [3].

– L'analyse qualitative est assurée par la gammamétrie pour déterminer la contribution isotopique de l'échantillon.

C'est un ensemble instrumental comprenant une diode de mesure associée à un multicanal analyseur et une partie électronique assistée par micro-informatique (logiciel de déconvolution et de traitement du spectre).

La diode qui est un détecteur à semi conducteur, se compose d'une pastille cristalline en germanium hyper pur (Ge-H.P.) placée entre deux électrodes. Ces électrodes sont reliées elles-mêmes à une source de tension afin de disposer d'un champ électrique.

A la suite de l'interaction d'un photon γ avec le cristal analyseur et du fait du champ électrique intense qui règne dans le cristal, les porteurs de charge «électrons et trous» se dirigent selon leur nature vers l'une ou l'autre électrode, créant ainsi un signal de tension d'amplitude proportionnelle à l'énergie cédée. Ce signal, amplifié, analysé, calculé est visualisé sous forme de spectre sur lequel est effectuée l'analyse (Fig. 2).

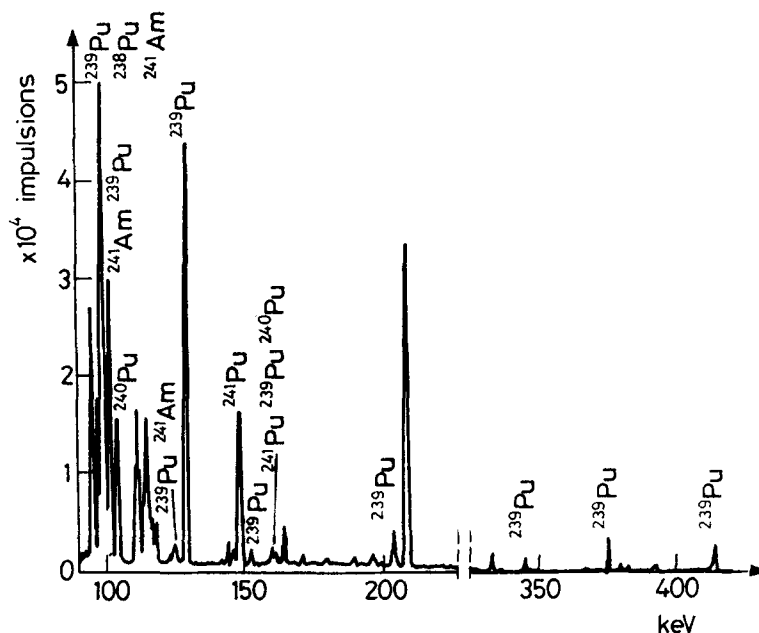


Fig. 2 Allure d'un spectre d'émission γ

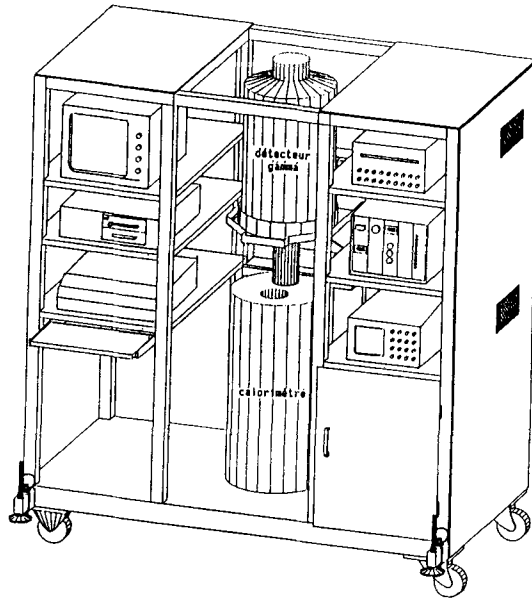


Fig. 3 Instrumentation «Plutonix»

Particularité de la méthode

C'est une méthode de mesure non destructive qui ne nécessite aucune intervention au niveau de l'échantillon. Cette qualité lui permet d'être non productive de déchets supplémentaires de types nucléaires. Méthode facile à mettre en oeuvre par son principe physique et expérimental. Sécurisante: elle ne présente pas de risque d'incident de contamination car l'échantillon en cours de mesure ne subit ni choc mécanique ni choc thermique (mesure en isotherme 28°C par exemple). L'étalonnage par effet joule permet à tout moment d'effectuer un étalonnage (électrique) rapide, même en cours de mesure par ajouts dosés. L'effet de matrice et les impuretés omniprésentes peuvent être négligés. Enfin cette méthode présente un faible investissement par rapport aux autres méthodes de mesures nucléaires (gammamétrie quantitative, neutrométrie passive et active etc...).

Domaine d'application [4]

La calorimétrie-gammamétrie associées s'applique en général aux radionucléides émetteurs α , β et γ présents dans les combustibles usés, dans tout le domaine de retraitement, jusqu'aux déchets contaminés.

Certains microcalorimètres de très haute sensibilité peuvent être utilisés dans le domaine d'analyse (sensibilité μW). Pour la comptabilité de matière nucléaire, le type de calorimètre présenté peut caractériser un bilan matière allant du gramme jusqu'aux kilogrammes de matière fissile à haut pouvoir énergétique (Pu). Pour d'autres masses, par exemple de 0,01 à 10 g, des étalonnages spécifiques doivent être effectués. Dans ce cas, il convient de bien maîtriser les problèmes d'environnement du calorimètre, perturbations thermiques, électriques, entre autres.

Dans le domaine de déchets nucléaires, avec des calorimètres à grand volume, la technique est bien appréciée tant par sa capacité à recevoir des colis (échantillons) de volumes variables (jusqu'à 200 litres) qu'à son aptitude à être indépendante de l'effet de matrice.

Les déchets technologique et de procédés se présentent très souvent sous des formes diverses et mal définies. Leurs conditionnements sont inévitablement «non reproductibles». L'effet de matrice est difficile à maîtriser (étalonnage) pour les méthodes de mesure d'émission; les effets d'atténuation sont difficilement contrôlables, voire devenir rédhitoires.

Résultats expérimentaux [4]

Plusieurs échantillons plutonium de masses connues ont été soumis dans les conditions de contraintes forcées afin de perturber les autres méthodes de mesures habituellement utilisées (pesées, gammamétrie, neutrométrie passive et

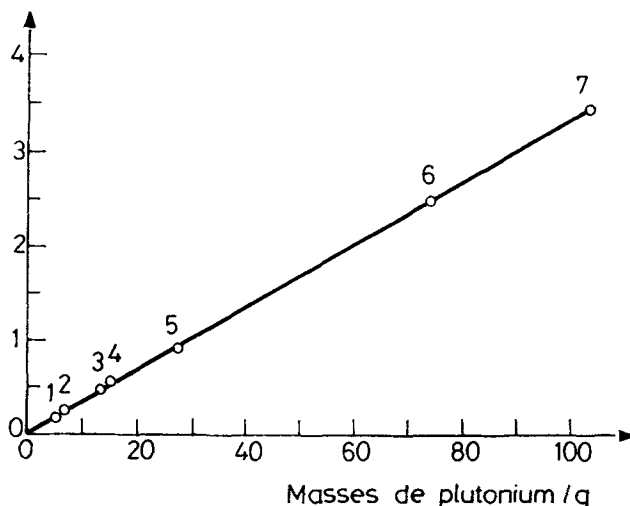


Fig. 4 Résultats expérimentaux: distribution du Plutonium en fonction de l'équivalent chaleur

active). Ces échantillons sont ensuite mesurés en calorimétrie-gammamétrie associées et les résultats sont donnés sur la figure 4.

Les échantillons (2) (3) et (6) sont sous forme de barreaux métalliques compacts et présentent une autoabsorption majeure. Le métal lourd (Pu) formant par lui-même un effet écran efficace pour les couches internes. Le coefficient d'atténuation à l'étalonnage pour l'émission γ dans ce cas est difficile à déterminer.

Les échantillons (1) et (4) sont mélangés avec du borate à des proportions assez importantes ($\geq 20\%$) qui est connu comme être poison pour l'émission de neutrons.

L'échantillon (5) est sous formes de grenaille d'alliage Pu, Ta, Cu et autres impûretés inactives, conditionné en conteneur polyéthylène (absorbeur neutron).

L'échantillon (7) est un mélange de barreau et de grenaille. Tous les échantillons présentent un état d'oxydation partiel.

Conclusion

Dans les conditions expérimentales décrites, avec le type de calorimètre utilisé et dans la gamme de masses de matière nucléaire mesurées, l'ensemble calorimétrie-gammamétrie associées, baptisées «Plutonix» est bien adapté comme technique de mesure nucléaire appliquée aux émetteurs α , β , γ . Pour des activités plus faibles (< 1 g de Pu), elle nécessite de soigner particulièrement l'environnement du calorimètre. En effet, le seuil de détection absolue de celui-ci est bien inférieur aux signaux mesurés ici. La difficulté de s'affranchir à des masses supérieures en matière nucléaire n'a pas permis d'étalonner au-delà des 100 grammes. Seul l'étalonnage électrique effectué (linéarité assurée jusqu'à 3 W) permet de prédire son aptitude à mesurer des masses de plutonium pouvant atteindre le kilogramme.

Bibliographie

- 1 P. Barberi et T. Tran, 41ème IUPAC, Salt Lake City Août 1992.
- 2 P. Barberi et T. Tran, Cong. AIEA ISPRA, Mars 1992.
- 3 P. Barberi et T. Tran, Journées Franco-Polonaise, Zaborow (Pologne).
- 4 T. Tran, Rapport interne CEA SETP/DPE, 1993.
- 5 J. M. Cork, Radioactivité et physique nucléaire, Dunod, Paris 1960.
- 6 R. Lasser, Tritium and helium-3 in metals, Springer Verlag, Berlin, New York 1988.
- 7 R. Panneter, Vademecum du Technicien nucléaire. SCF du Bastet Paris 1980.
- 8 L. M. R. I. Recueil des données principales relatives aux schémas de désintégration des radionucléides les plus utiles, CEA France, 1987.

Zusammenfassung — Kalorimetrie kann als eine Technik nuklearer Messungen betrachtet werden. In Verbindung mit Gammametrie kann sie die Messung von nuklearem Material sichern, welches α , β und γ Strahlen aussendet.

Das Gammaspektrometer kann unter Verwendung eines hochreinen Germaniumdetektors die Isotopenzusammensetzung der Probe beschreiben, das Differentialkalorimeter mißt mit der Thermosäule die äquivalente Erwärmung anhand der nuklearen Eigenschaften dieser Isotope.