

Calorimétrie : une méthode non destructive pour la mesure du tritium et son inventaire

La détermination des inventaires de matières nucléaires est une obligation permanente et réglementaire pour l'exploitation d'une installation nucléaire. Pour le cas des installations tritium du CEA - Valduc, la calorimétrie est une technique de mesure thermodynamique parmi les plus utilisées depuis de nombreuses années. Simple d'utilisation, cette technique de contrôle non destructif présente de nombreux avantages. Les limites sont imposées par le volume et la masse des objets à mesurer en adéquation avec la sensibilité et les dimensions de la cellule de mesure du calorimètre. C'est dans ce but qu'un nouveau calorimètre **1**, dédié aux objets de gros volume - jusqu'à 385 litres et 400 kg - et plus spécifiquement à la mesure de déchets nucléaires contaminés au tritium, a été développé et breveté par le CEA et la société KEP Technologies.

Le tritium est l'isotope radioactif de l'hydrogène. Il est exploité dans les installations nucléaires du CEA - DAM sous sa forme gazeuse et on peut le retrouver sous toutes les formes physico-chimiques comportant des liaisons hydrogénées, les plus courantes étant ses formes oxydées (vapeur d'eau) ou organique (liée au carbone). Le tritium se désintègre en hélium 3, stable, avec l'émission d'un électron de faible énergie. Hormis la scintillation liquide dédiée aux faibles concentrations **2**, les moyens conventionnels de mesure nucléaire ne sont pas pleinement adaptés à la mesure du tritium et seules les techniques d'analyse chimique répondent à ce besoin **3**. Indépendamment de sa forme physico-chimique, la décroissance radioactive du tritium s'accompagne d'un dégagement de chaleur qui est mesurable par une technique calorimétrique. La grandeur physique qui relie ce dégagement de chaleur à une quantité de matière est appelée la

puissance spécifique et est égale à 324 mW/g pour le tritium. En l'absence de toute autre source de chaleur, la puissance thermique dégagée par un objet est ainsi directement proportionnelle à la quantité de matière qu'il contient. De manière générale, l'intérêt de la calorimétrie est multiple : non intrusive, non destructive, elle ne dépend pas de la géométrie de l'objet ni de la forme chimique du radioélément et ne nécessite aucun prélèvement de matière ni aucune préparation d'échantillon, ce qui la rend particulièrement attractive pour la quantification des inventaires de matières nucléaires. La période radioactive du tritium (12,3 ans) étant grande devant les temps de mesure (quelques jours), la calorimétrie est une technique parfaitement adaptée à la quantification du tritium.

Sur la base du calorimètre dit Calvet, les calorimètres développés pour les besoins du tritium exploitent le principe de la mesure différentielle de flux de chaleur selon un design de cellules jumelles parfaitement identiques (**figure 1**). Ce concept permet ainsi une meilleure stabilisation des signaux calorimétriques et améliore les performances de la mesure. La taille de ces calorimètres constitue cependant l'un des inconvénients de cette technologie, liée en grande partie à la présence d'une cellule de référence jumelle à la cellule de mesure. C'est dans le but de réduire ces contraintes dimensionnelles et dans le cadre d'un programme de gestion de déchets tritiés que le calorimètre gros volume LVC1380 (*Large Volume Calorimeter* 1380) a été développé.

Les enjeux de ce développement sont multiples : conserver le principe de la calorimétrie différentielle, adapter la taille de la cellule de mesure et optimiser l'encombrement du calorimètre aux objets volumineux à mesurer (fûts de 100 ou 200 litres, conteneurs spécifiques), mais également faciliter les conditions d'exploitation et les opérations de chargement des colis. L'ensemble de ces critères a été respecté par un travail de conception breveté en France et à l'international **4** et porté par le CEA - Valduc et la société KEP Technologies. Dans cette configuration innovante (**figure 2**), la cellule de référence est

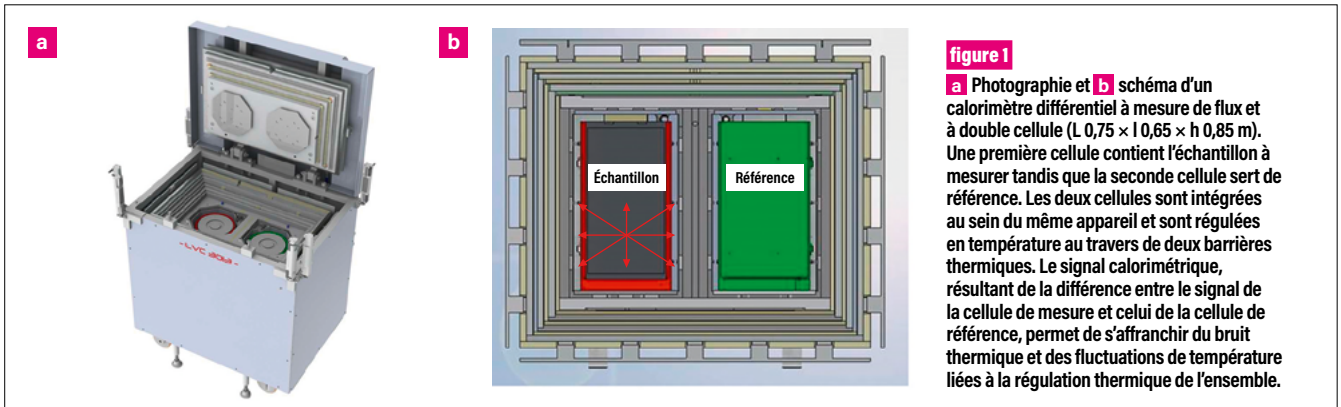


figure 1

a Photographie et **b** schéma d'un calorimètre différentiel à mesure de flux et à double cellule (L 0,75 × l 0,65 × h 0,85 m). Une première cellule contient l'échantillon à mesurer tandis que la seconde cellule sert de référence. Les deux cellules sont intégrées au sein du même appareil et sont régulées en température au travers de deux barrières thermiques. Le signal calorimétrique, résultant de la différence entre le signal de la cellule de mesure et celui de la cellule de référence, permet de s'affranchir du bruit thermique et des fluctuations de température liées à la régulation thermique de l'ensemble.

imbriquée dans la cellule de mesure, permettant de supprimer physiquement la cellule de référence et ainsi de réduire significativement les dimensions du calorimètre. On parle de cellule de référence fantôme. Pratiquement, les plaques de mesure qui entourent la cellule et collectent la puissance émise par l'échantillon sont combinées avec des plaques de référence qui simulent le comportement thermique des plaques de mesure, tout en étant isolées thermiquement de celles-ci. La stabilité thermique est assurée par une double isolation thermique et une régulation très fine du bloc thermique au millième de degré (typiquement $30,000 \pm 0,001$ °C). La forme hexagonale de la cellule de mesure du calorimètre s'adapte aux formes cylindriques des

conteneurs, et le système d'ouverture en deux demi-coquilles facilite son ouverture et son chargement. Contrairement aux calorimètres à cellules jumelles qui sont exploités pour le tritium en boîtes à gants et dans des locaux climatisés, le calorimètre LVC1380 est dimensionné pour pouvoir être utilisé sur des chantiers de démantèlement d'installations nucléaires tritium sans enceinte de confinement et sans système de refroidissement à eau. Après étalonnage, la sensibilité de l'instrument a été calculée à $\pm 0,25$ % dans la gamme de puissance de 0 à 3,5 W (soit de 0 à 10 g de tritium), avec une précision de mesure de ± 2 % pour une quantité de tritium mesurée en milieu de gamme.

La réalisation de ce calorimètre s'inscrit dans une démarche innovante

de développement d'un équipement de quantification de matière nucléaire, le tritium, et dans le cadre d'une application spécifique, la mesure de déchets tritiés. Les premières mesures en configuration réelle ont été réalisées avec succès dans les ateliers de tritium de Marcoule, dépendant du CEA – DAM et dont les installations sont en cours de démantèlement. La calorimétrie se positionne ainsi en complément des techniques conventionnelles de contrôle non destructif en mesure nucléaire, que ce soit pour l'exploitation d'une installation nucléaire ou pour son démantèlement. L'application au tritium décrite dans cet article n'est pas limitative, la calorimétrie étant par ailleurs utilisée pour la quantification d'autres radioéléments tels que le strontium ou le plutonium.

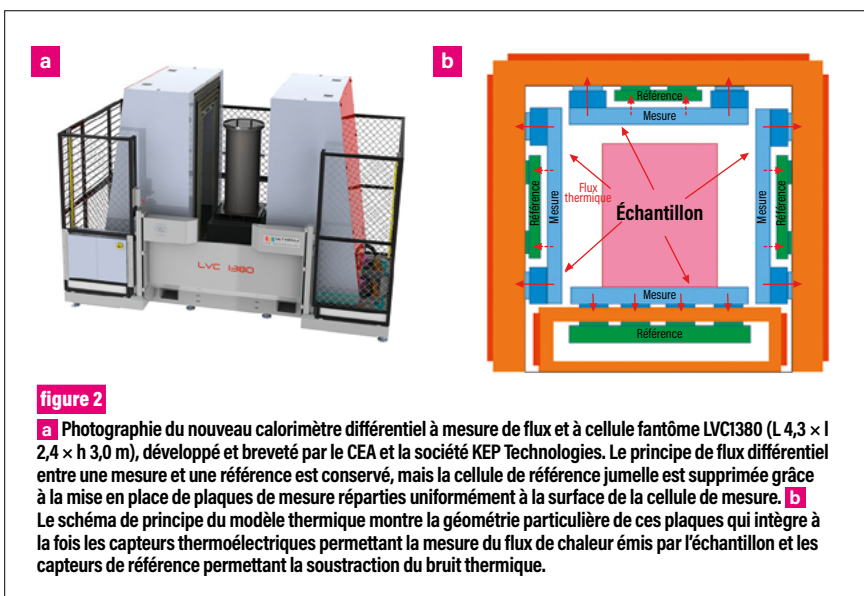


figure 2

a Photographie du nouveau calorimètre différentiel à mesure de flux et à cellule fantôme LVC1380 (L 4,3 × l 2,4 × h 3,0 m), développé et breveté par le CEA et la société KEP Technologies. Le principe de flux différentiel entre une mesure et une référence est conservé, mais la cellule de référence jumelle est supprimée grâce à la mise en place de plaques de mesure réparties uniformément à la surface de la cellule de mesure. **b** Le schéma de principe du modèle thermique montre la géométrie particulière de ces plaques qui intègre à la fois les capteurs thermoélectriques permettant la mesure du flux de chaleur émis par l'échantillon et les capteurs de référence permettant la soustraction du bruit thermique.

RÉFÉRENCES

- 1** F. Bachelet, S. Clouard, A. Lis, R. André, C. Mathonat, « Calorimetry: An NDA method for tritium measurement and accountability », *Fusion Science and Technology*, **76**, p. 699-702 (2020). <https://doi.org/10.1080/15361055.2020.1766273>
- 2** N. Baglan, P. Cassette, E. Ansoborlo, V. Belin, *Mesure du rayonnement bêta – DROP Bêta*, EDP Sciences (2020).
- 3** H. Pialot, H. Guidon, P. Marty, D. Demange, « Analyse du tritium et de ses composés », revue *chocs*, **25**, p. 47-58 (2001).
- 4** G. Jossens, C. Mathonat, J.-C. Hubinois, A. Godot, F. Bachelet, « Calorimètre différentiel à mesure de flux », Brevet XD138971M, FR 13 50360 (2013), EP 14 700408.9 (2015), JP 6377636 (2018), US 10 078 061 B2 (2018).