Faire face aux enjeux d'une quantification précise du tritium grâce à la calorimétrie

setsafe
KEP TECHNOLOGIES

Sommaire

1- Pourquoi caractériser et quantifier la matière et les déchets nucléaires ? 04

2- Le tritium, ses sources et utilisations 05

3- La quantification du tritium : défis et opportunités 07

4- La calorimétrie comme technique de mesure et de quantification du tritium 09

5- Le principe général de la calorimétrie pour caractériser la matière et les déchets nucléaires 10

6- Le principe spécifique de la mesure de tritium par calorimétrie 13

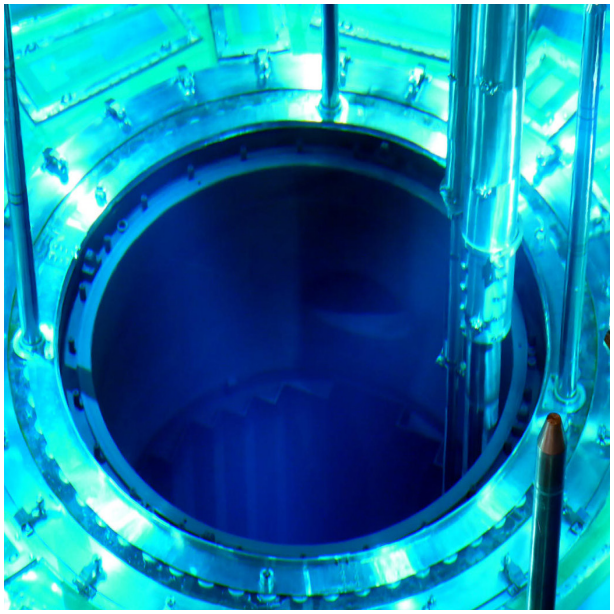
7- Nos références 15

8- A propos de Setsafe et de KEP Technologies 16

9- Bibliographie 18

1.

Pourquoi caractériser et quantifier la matière et les déchets nucléaires ?



Pour toute installation nucléaire, gérer des inventaires ou des quantités de matières et de déchets radioactifs est un enjeu majeur, aux multiples facettes : protection des travailleurs et de la population contre les dangers des rayonnements ionisants, valorisation de cet inventaire par des voies de développement économique, mitigation des risques de perte, de vol, de détournement de ces matières et déchets à des fins hostiles, limitation des contraintes imposées aux générations futures.

Pour répondre à certains de ces enjeux, les réglements nationaux ou internationaux imposent la réalisation d'inventaires, c'est-à-dire de bilans matières, à différentes échelles.

Par exemple, la circulaire 153 de l'Agence Internationale de l'Energie Atomique indique que les accords entre l'AIEA et les États membres doivent « *prévoir que l'État établit et maintient un système de comptabilité et de contrôle de toutes les matières nucléaires soumises à des garanties* […] *et que ces garanties sont appliquées* […] *en s'assurant qu'il n'y ai pas eu de détournement de matières nucléaires d'utilisations pacifiques vers des armes nucléaires ou d'autres dispositifs explosifs nucléaires*». De plus, « *l'accord devrait prévoir que le système de comptabilité et de contrôle de l'État* […] *est fondé sur une structure de bilan matières, et prévoit* […] *la mise en place de dispositions telles que (a) Un système de mesure permettant de déterminer les quantités de matières nucléaires reçues, produites, expédiées, perdues ou retirées de toute autre manière du stock, ainsi que les quantités en stock (b) L'évaluation de la précision et de l'exactitude des mesures et l'estimation de l'incertitude des mesures.* » (Traduit de l'anglais depuis [1])

Ainsi ces installations doivent appliquer des solutions simples et sûres pour contrôler rigoureusement la quantité de matières sur leurs sites à l'aide de moyens de caractérisation fiables.

Le tritium est produit en grande quantité dans les réacteurs à eau lourde sous pression (PHWR) dont la majorité sont de type CANDU (pour CANadian Deutérium natural Uranium).

2.
Le tritium, ses sources et utilisations

Le tritium est un isotope radioactif de l'hydrogène qui se désintègre en hélium 3, stable, avec une demi-vie de 12,33 ans.

Les principales sources de tritium

Le tritium existe à l'état naturel et est également un sous-produit de l'industrie nucléaire. Il existe sous forme gazeuse, mais on peut également le trouver sous forme oxydée (eau ou vapeur d'eau tritiée) ou organique (liée au carbone).

L'action des rayons cosmiques (neutrons) sur certains composants de l'air (azote 14) conduit à une production naturelle de tritium atmosphérique comprise entre 0,15 et 0,20 kg par an. Il est également produit dans la croûte terrestre, mais en très faible quantité [2].

La plupart des technologies de réacteurs produisent du tritium.

Certaines en génèrent en quantités tellement faibles qu'il n'est ni intéressant de le récupérer ni dangereux de le rejeter dans l'environnement. Cela s'entend pour des rejets directs sous forme gazeuse ou liquide, ou via les usines de traitement des combustibles.

Par contre, le tritium est produit en grande quantités dans les réacteurs à eau lourde sous pression (PHWR) dont la majorité sont de type CANDU (pour CANadian Deutérium natural Uranium) [3]. Il se présente principalement sous la forme d'eau tritiée (HTO) et peut être extrait pour une utilisation industrielle.

Ce procédé est appliqué dans des installations d'extraction du tritium (ou TRF pour Tritium Removal Facility en anglais) en deux étapes : extraction catalytique en phase vapeur, puis distillation cryogénique pour une production approximative d'une à quelques centaines de grammes par an et par installation [3] [4] [5].

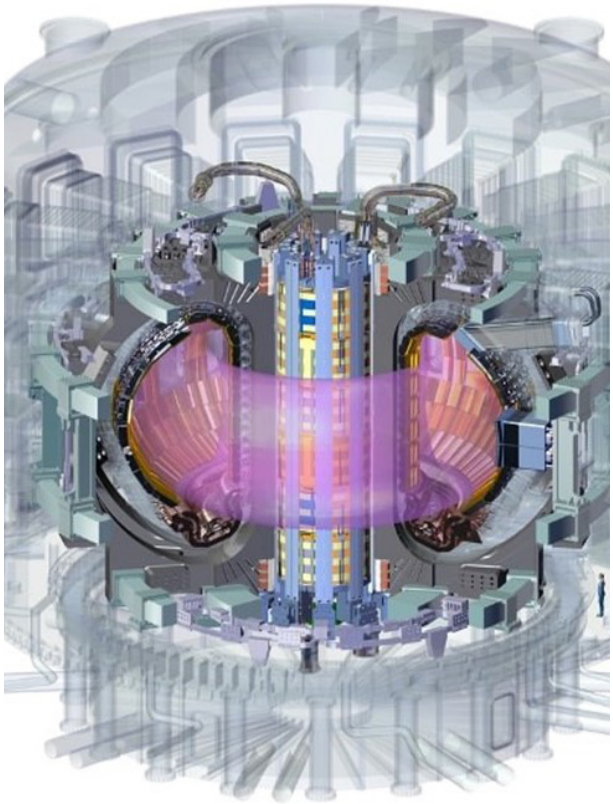


Figure – Le solénoide central du tokamak d'ITER, dispositif expérimental conçu pour exploiter l'énergie de la fusion du deutérium et du tritium (Credit © ITER Organization, http://www.iter.org/)

Les principales utilisations du tritium

La réaction de fusion thermonucléaire entre le deutérium et le tritium est à la base de l'arsenal de dissuasion nucléaire de certains pays [6]. Mais cette réaction sera également exploitée dans les réacteurs de fusion nucléaire. C'est en particulier l'objet des recherches entreprises à l'échelle mondiale avec le projet ITER.

Les besoins en tritium sont importants dans ce secteur, avec une estimation de 25 kg pour le dispositif expérimental ITER.

Pour l'étape suivante, le réacteur de démonstration DEMO qui doit conduire la fusion jusqu'au seuil de l'exploitation industrielle, les besoins en tritium seront de l'ordre de 300 g par jour pour produire 800 MW d'électricité [7].

Des utilisations moins courantes exploitent la capacité du tritium à faire briller les matières phosphorescentes pour la signalisation lumineuse, comme produit de radiochimie ou comme traceur pour la recherche ou l'exploitation pétrolière et gazière.

3.

La quantification du tritium : défis et opportunités

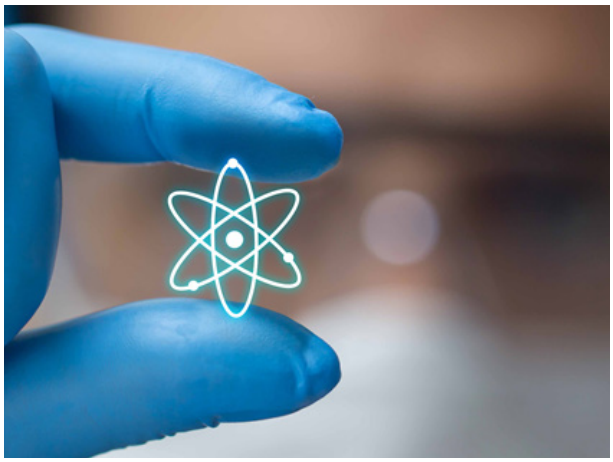
Comptabilité et inventaire de tritium, gestion des déchets tritiés

Les besoins de contrôle dans le cadre du stockage de matière et de déchets radioactifs sont détaillés dans le paragraphe 1 du présent document. Cependant, les défis rencontrés pour caractériser la matière et les déchets tritiés sont nombreux.

D'une part, leur entreposage et leur stockage sont rendus difficiles du fait de sa tendance à dégazer. Le tritium en provenance des installations militaires est notamment à l'origine de déchets tritiés qui posent problèmes, davantage en raison de la mobilité du tritium que de sa toxicité radioactive [6].

D'autre part, la concentration en tritium est très variable au sein d'un même composant. Les mesures destructives par prélèvement sont donc peu représentatives.

Hormis la scintillation liquide qui est dédiée aux faibles concentrations, 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 [8]. Elles restent cependant des techniques basées sur des prélèvements, avec les problèmes de représentativité cités plus haut.



Quantification de tritium en vue d'échanges commerciaux

Le tritium étant produit à l'échelle mondiale en très petites quantités (pour rappel un réacteur CANDU produit quelques centaines de grammes de tritium par an), et son procédé d'extraction étant complexe et donc couteux, le gramme de tritium s'échange à un tarif élevé de 30 000 à 35 000$ environ [9] [10]. Une installation produit donc l'équivalent de quelques millions à quelques dizaines de millions de dollars par an.

L'exactitude des mesures de quantités de tritium échangées entre le producteur et l'utilisateur est donc critique car elle a un impact économique direct. La moindre incertitude de mesure occasionnerait une sous-estimation ou une surestimation qui porterait préjudice à à l'une ou l'autre des parties.

Quantification de tritium pour le transport

Si on compare avec le stockage, le transport de matière radioactive présente des risques accrus, notamment en matière de perte, de vol ou de détournement. Ainsi les règlements internationaux encadrent le transport de ces matières et imposent la mesure de leur quantité (ou activité).

L'AIEA indique par exemple que « *la matière à transporter doit être caractérisée pour identifier les radionucléides, la forme et les activités de la matière afin d'attribuer un niveau de sûreté du transport. Dans certains cas, un envoi peut consister en un seul radionucléide, dans un seul ou plusieurs colis. Dans d'autres cas, il peut y avoir plusieurs radionucléides dans un seul colis ou plusieurs colis contenant plusieurs radionucléides dans un seul envoi. L'identité et le niveau d'activité de chacun des radionucléides doivent être identifiés.* » (Traduit de l'anglais depuis [11]).

Un colis contenant du tritium doit donc être caractérisé pour en quantifier le contenu et y associer le niveau de sécurité de transport adéquat.

Le stockage de tritium, aujourd'hui fortement centralisé sur des sites spécifiques, combiné à des échanges commerciaux croissants, vont ainsi imposer des besoins de mesures précises sur tous les sites expéditeurs et tous les sites destinataires.

4.

La calorimétrie comme technique de mesure et de quantification du tritium

La calorimétrie est une technique basée sur la mesure de chaleur émise par un colis de matière ou de déchet radioactif. Elle est réputée être très fiable, entre autres pour caractériser le tritium ou le plutonium.

Elle dispose en effet d'avantages intéressants pour ces mesures :

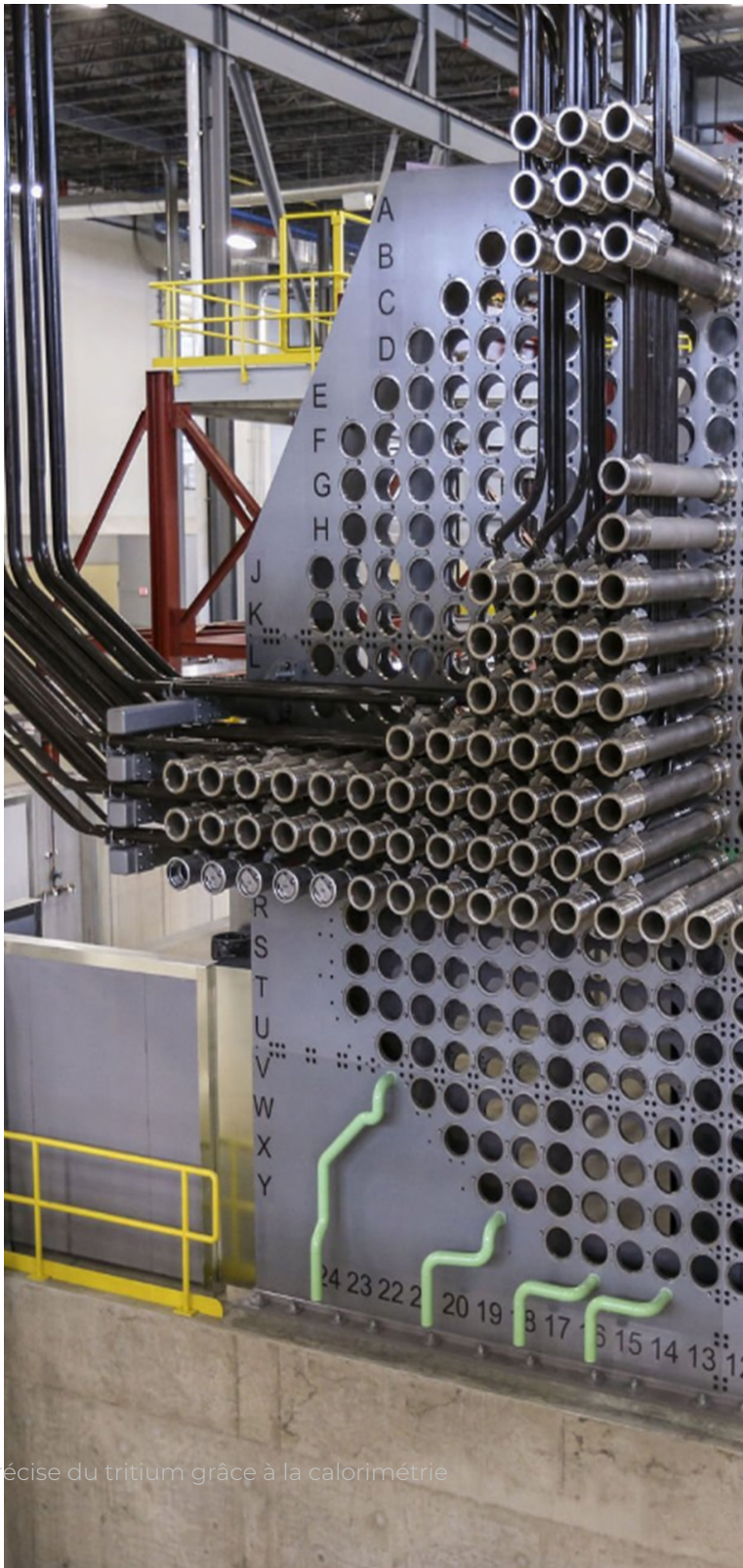
1. La mesure est non-destructive et réalisée sur le colis entier, elle est donc représentative.

2. La calorimétrie permet des exactitudes de mesure de quantités de tritium meilleures que 0,5% [12], elle est donc considérée comme la technique d'analyse non destructive du tritium la plus fiable.

3. La calorimétrie peut être utilisée sur tout type de matrice ou de matériaux, sans influence sur ses résultats de mesure [13].

4. La mesure calorimétrique ne dépend pas de la géométrie de l'objet ni de la forme chimique du radioélément [8].

Le principe de la mesure calorimétrique et son exploitation pour la quantification du tritium sont détaillés dans les chapitres suivants.



En plaçant un conteneur de matière radioactive au sein d'un calorimètre, on mesure l'échauffement du conteneur lié à la désintégration nucléaire de cette matière.

5.

Le principe général de la calorimétrie pour caractériser la matière et les déchets nucléaires

La désintégration nucléaire des éléments radioactifs génère des particules chargées. Celles-ci sont ralenties puis arrêtées en traversant les matériaux environnants. Ce faisant, elles déposent une partie de leur énergie, provoquant l'échauffement des matériaux.

La calorimétrie est une méthode permettant de mesurer la chaleur échangée entre un objet et son environnement. Ainsi, en plaçant un conteneur de matière radioactive au sein d'un calorimètre, on mesure l'échauffement du conteneur lié à la désintégration nucléaire de cette matière.

Si le conteneur est conçu avec un matériau suffisamment dense et épais pour arrêter la totalité des particules chargées, et en l'absence de toute autre source de chaleur, il existe une relation linéaire entre la puissance thermique mesurée par le calorimètre et l'activité de la matière radioactive.

La puissance thermique dégagée par le conteneur est ainsi directement proportionnelle à la quantité de matière qu'il contient, et une mesure calorimétrique devient une mesure de la quantité de matière radioactive.

Les calorimètres dédiés à la caractérisation de colis de matières ou de déchets radioactifs sont qualifiés d'« isothermes », car ils régulent la température de l'environnement du colis pour qu'elle soit suffisamment stable pour ne pas perturber la mesure de flux de chaleur. La valeur de consigne de régulation est fixée par l'utilisateur dans la limite de la gamme de fonctionnement du calorimètre.

Les calorimètres utilisent pour la plupart le principe de la mesure différentielle de flux de chaleur selon une conception spécifique utilisant deux cellules jumelles parfaitement identiques.

L'une est appelée cellule de mesure et contient le colis à caractériser, l'autre est appelée cellule de référence et contient généralement un colis vide, inerte thermiquement. Ce concept permet ainsi une meilleure stabilisation des signaux calorimétriques et améliore les performances de la mesure.

Il existe des exceptions, dans lesquelles la cellule de référence est remplacée par une version dite « fantôme » beaucoup moins volumineuse, mais ayant la même fonction de stabilisation du signal calorimétrique. Cette approche est utilisée dans les calorimètres de très grand volume afin de limiter l'encombrement de l'appareillage.

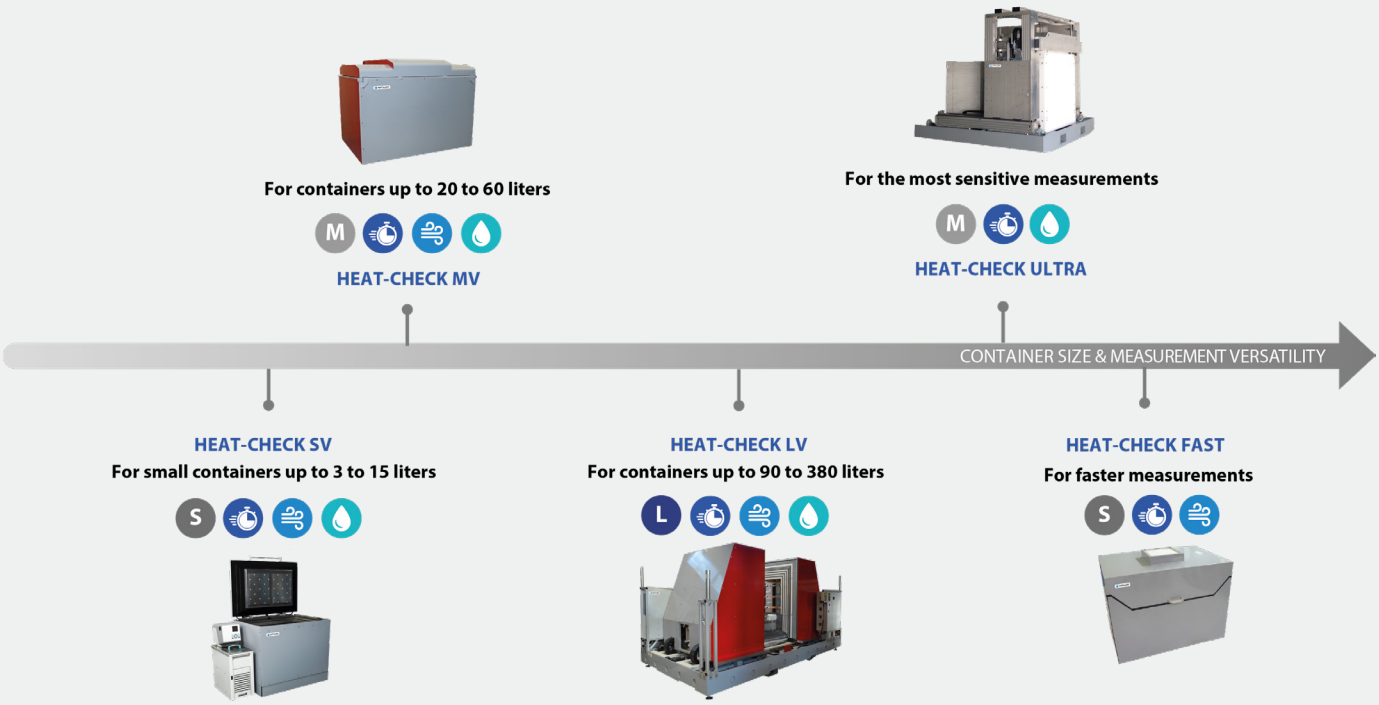


Figure – Représentation de la gamme de calorimètres de la marque Setsafe. Les variantes diffèrent notamment par leurs capacités en termes de volume de colis mesurable, de limite de détection et de rapidité de mesure.

La dimension des cellules de chaque calorimètre est optimisée pour les volumes des colis à caractériser, de quelques litres à quelques centaines de litres.

Les capteurs de flux thermique qui équipent ces cellules emploient des éléments thermoélectriques, qui génèrent un signal électrique lorsqu'ils détectent un échauffement. Ainsi, pour afficher un signal thermique et non plus électrique, une opération d'étalonnage est nécessaire.

Cette dernière est réalisée à l'aide de dispositifs dits « à effet Joule ».

Il s'agit en substance de résistances chauffantes très précises, qui émettent une puissance thermique fixée par l'opérateur.

La réaction du signal du calorimètre à cet effet Joule est analysée et permet l'étalonnage de sa mesure de flux thermique, avant la réalisation de séries de mesures sur des colis.

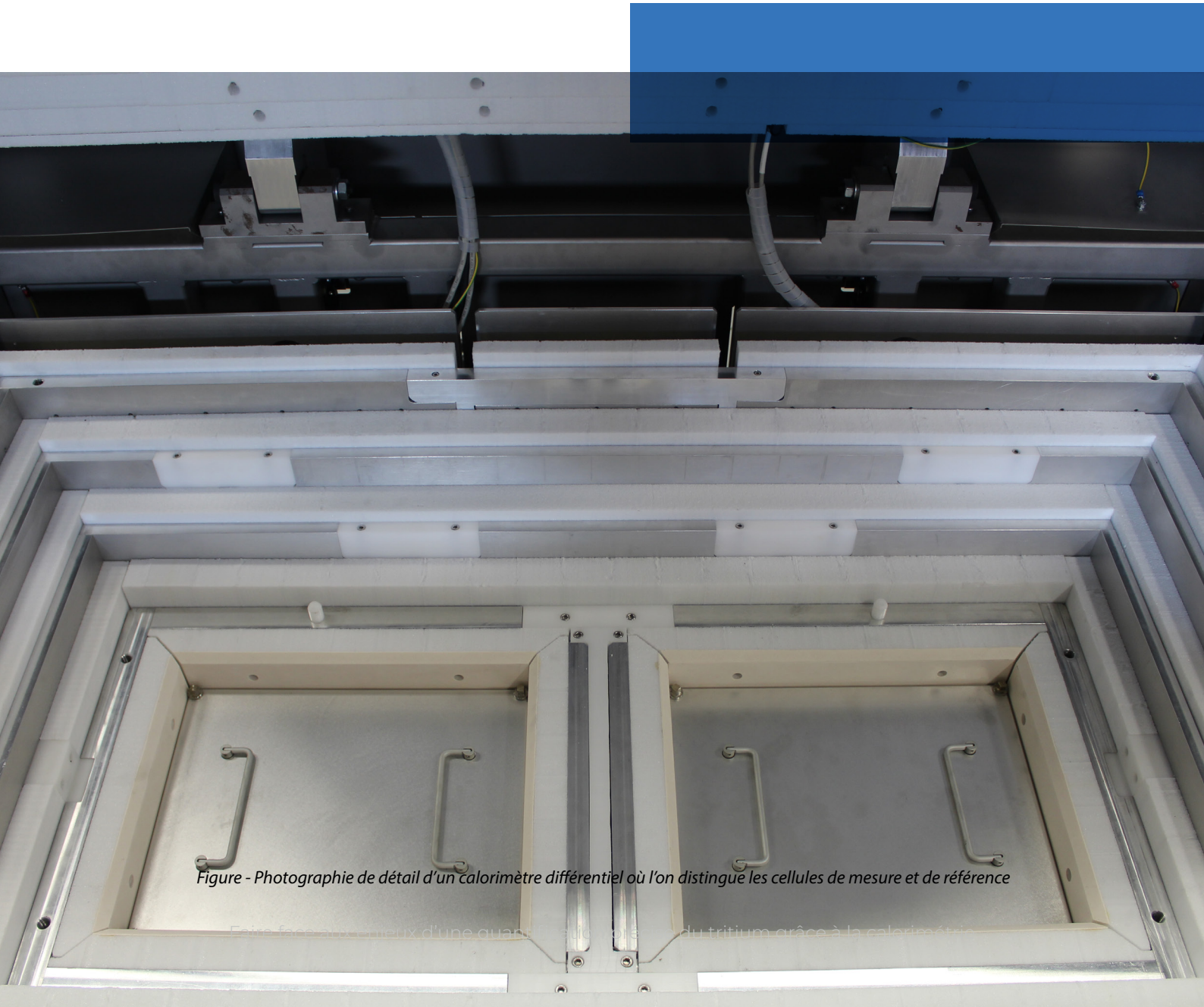


Figure - Photographie de détail d'un calorimètre différentiel où l'on distingue les cellules de mesure et de référence

6.

Le principe spécifique de la mesure de tritium par calorimétrie

Le tritium émet un rayonnement béta de faible énergie (Emax = 18.6 keV, Emoy = 5.7 keV) qui peut être arrêté par une faible épaisseur de matière. La plupart des conteneurs de produits tritiés sont donc capables de collecter l'intégralité de l'énergie déposée par les rayonnements béta du tritium.

En l'absence de toute autre source de chaleur, la puissance thermique dégagée par un conteneur de tritium est ainsi directement proportionnelle à la quantité de matière qu'il contient.

La grandeur physique qui relie ce dégagement de chaleur à une quantité de matière est appelée la puissance spécifique. La puissance spécifique du tritium est égale à 324 milliwatts par gramme de tritium.

Le calorimètre, après étalonnage, mesure un flux thermique généré par le colis mesuré en milliwatts. La quantité de tritium dans le colis est donc simplement calculée à partir de la relation de proportionnalité suivante :

$$Masse_{tritium} = \frac{Flux\ de\ chaleur_{colis}}{Puissance\ spécifique_{tritium}}$$

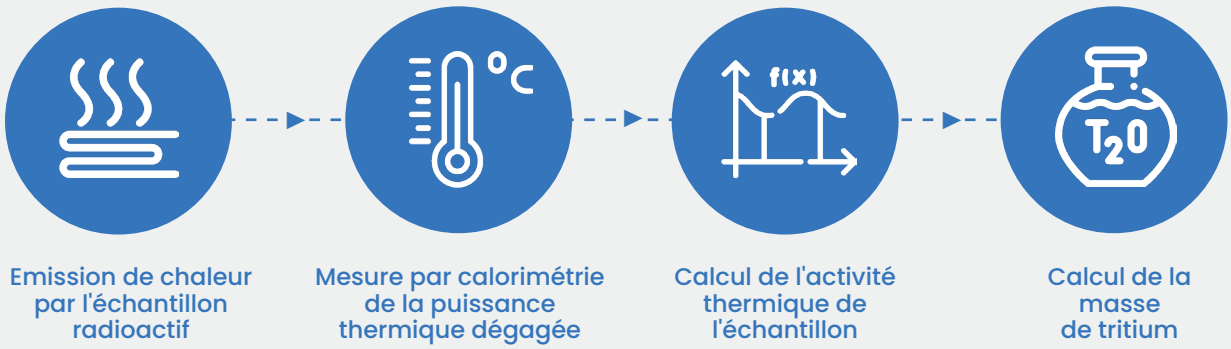


Figure – Principe de la mesure par calorimétrie

Un colis de tritium générant une puissance thermique mesurée de 32,4 milliwatts contient donc 0,1 grammes de tritium. Typiquement, la calorimétrie s'applique à des mesures de quantités de tritium de 1 milligramme à 400 grammes [14].
L'activité quant à elle est calculée de la façon suivante :

$$Activité_{tritium} = \frac{Flux\ de\ chaleur_{colis}}{Puissance\ spécifique_{tritium}} \times Activité\ massique_{tritium}$$

L'activité massique étant égale à: 356TBq/g.

La mesure se déroule en quatre étapes simples :

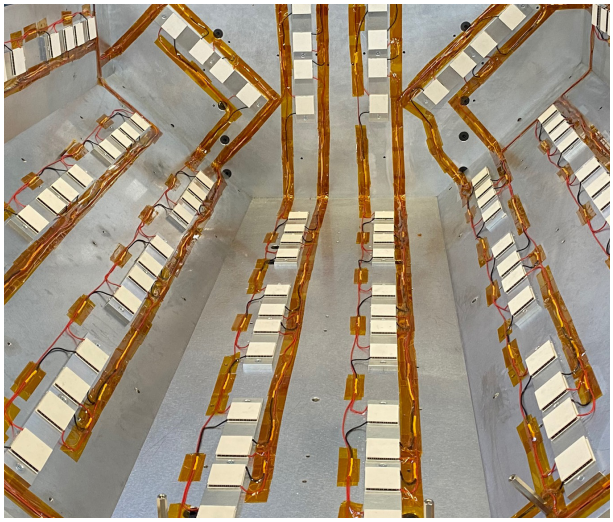
1. Le colis est introduit dans le calorimètre et ce dernier est fermé pour éviter le maximum de fuites thermiques vers l'extérieur,

2. La température et les échanges thermiques sont stabilisés pendant une durée dépendante des caractéristiques du colis et du calorimètre,

3. La puissance thermique générée est notée à partir du signal du calorimètre,

4. Cette valeur de puissance thermique est convertie en quantité de tritium à l'aide de la relation vue plus haut.

Parmi de nombreux exemples concrets d'utilisations de cette méthode à travers le monde, on peut par exemple citer le CEA en France, qui quantifie entre autres l'eau tritiée adsorbée sur une zéolite à l'intérieur de pièges à tamis moléculaires [15].



En Corée, le KEPRI emploie la calorimétrie pour contrôler les quantités de tritium issues de son installation d'extraction WTRF (Wolsong Tritium Removal Facility) et fournies à ses clients (ITER, industries, etc) [12]. L'EFDA (EUROfusion aujourd'hui) utilise la calorimétrie pour suivre et caractériser l'efficacité de prodécés de détritiation (Exhaust Detritiation System) de déchets de l'installation de recherche JET (Joint European Torus) [16].

Plus généralement, la calorimétrie est considérée comme étant un complément des techniques conventionnelles de contrôle non destructif en mesure nucléaire. Son utilisation dans la mesure du tritium n'est pas limitative, elle est par ailleurs largement utilisée pour la quantification de radioéléments tels que l'américium, le strontium ou le plutonium [8].

La norme ASTM C1458-16 [17] mentionne par exemple la mesure de plutonium dans des oxydes mixtes d'uranium et de plutonium (PuO_2-UO_2), la mesure de plutonium dans des résidus de sels fondus et la mesure d'américium 241 dans des résidus de sels fondus.

La caractérisation par calorimétrie d'éléments radioactifs tels que le tritium, le plutonium, et l'américium 241 fait l'objet d'une norme.

7. Nos références

Utilisateurs et témoignages

« *La calorimétrie est la technique la plus fiable parmi les techniques d'analyses non destructives de quantification des teneurs en plutonium ou tritium dans une matrice* » [13].

« *La calorimétrie est une méthode non destructive qui peut être utilisée avec succès pour mesurer le tritium et qui permet d'obtenir une grande précision lors de mesures statiques* » (Traduit de l'anglais à partir de [5]).

« *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* » [8]

Normes

La caractérisation par calorimétrie d'éléments radioactifs tels que le tritium, le plutonium, et l'américium 241 fait l'objet depuis 2000 d'une norme de l'American Society for Testing and Materials. Cette norme a été révisée à plusieurs reprises et sa dernière version en date a été publiée en décembre 2016:
ASTM C1458-16, Standard Test Method for Non-destructive Assay of Plutonium, Tritium and 241Am by Calorimetric Assay [Report]. - West Conshohocken, United States : ASTM International, 2016.

8.

A propos de nous

KEP Technologies

KEP Technologies est un groupe industriel familial crée en 1996. KEP Technologies est une ETI (Entreprise de Taille Intermédiaire) qui compte plus de 600 employés et génère un chiffre d'affaires de plus de 70 M€.

Orientée à l'international par sa présence industrielle et commerciale sur 5 continents, elle propose à ses clients des solutions industrielles et technologiques dans une grande diversité de marchés : aéronautique, spatial, santé, recherche, défense, sécurité, énergie, environnement, transport, luxe…

Le groupe KEP Technologies, au travers de ses diverses marques, compétences et activités, accompagne ses clients du secteur nucléaire pour répondre à leurs enjeux.

Ceux-ci nécessitent le recours à des solutions spécifiques qui impliquent l'expertise, les capacités d'innovation, les compétences diversifiées, les certifications (CEFRI) et la maitrise des méthodes de gestion de projet.

Setsafe

Par le biais de sa marque Setsafe, KEP Technologies propose des solutions pour la mesure de la radioactivité et sa mise en œuvre dans le secteur nucléaire.

Nous travaillons avec nos clients à la fourniture de solutions standards ou sur mesure pour répondre aux enjeux liés à la mesure de la radioactivité.

Notre expertise

Notre équipe d'experts peut mener le projet de la conception jusqu'à l'installation, la formation et la maintenance. Nos expertises en ingénierie, contrôle industriel et systèmes métalliques nous permettent d'intervenir sur des projets vastes et variés, tout en respectant l'ensemble des contraintes du secteur nucléaire.

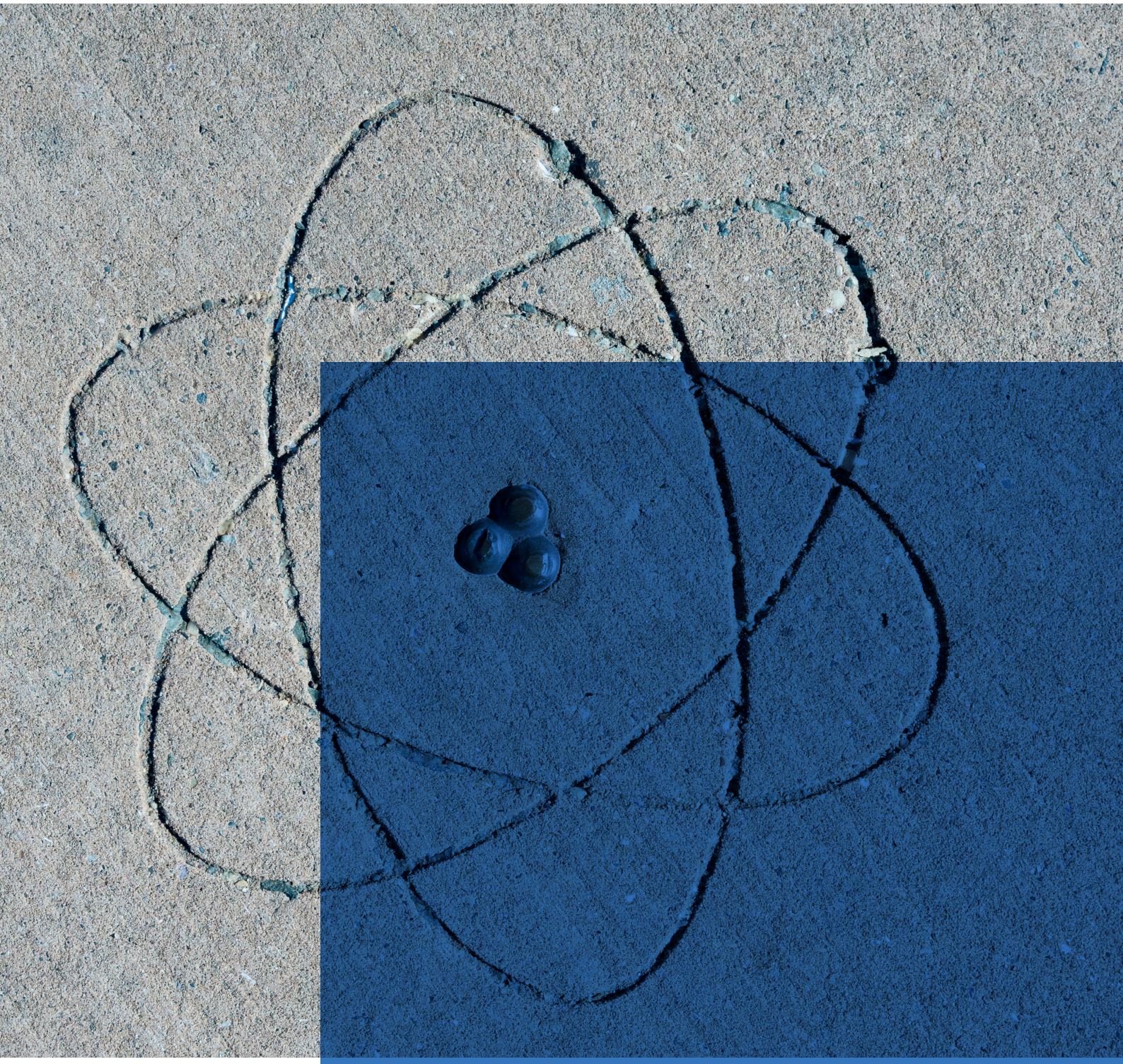
KEP Technologies dispose de deux brevets concernant la calorimétrie pour la caractérisation de matière et déchets radioactifs :

- EP2946184 CALORIMETRE DIFFERENTIEL A MESURE DE FLUX DE CHALEUR en copropriété avec le Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives.

- FR3028948 CALORIMETRE POUR LA MESURE D'UNE QUANTITE DE MATIERE ACTIVE.

Faire face aux enjeux d'une quantification précise du tritium grâce à la calorimétrie

9.
Bibliographie



[1]
https://www.iaea.org/sites/default/files/publications/documents/infcircs/1972/infcirc153.pdf

[2]
Le tritium et l'environnement – Société Française de radioprotection

[3]
Richard J. Pearson, Armando B. Antoniazzi, William J. Nuttall, Tritium supply and use: a key issue for the development of nuclear fusion energy, Fusion Engineering and Design, Volume 136, Part B, 2018, Pages 1140-1148, ISSN 0920-3796, https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2018.04.090.

[4]
Livre blanc du tritium, Autorité de Sureté du Nucléaire, page 132, https://www.asn.fr/sites/tritium/132/

[5]
Soon-Hwan Son, Sook-Kyung Lee, Kwang-Sin Kim, Tritium production, recovery and application in Korea, Applied Radiation and Isotopes, Volume 67, Issues 7–8, 2009, Pages 1336-1340

[6]
https://laradioactivite.com/le-phenomene/letritium

[7]
https://www.iter.org/fr/mach/tritiumbreeding

[8]
F. Bachelet et al, Calorimétrie : une méthode non destructive pour la mesure du tritium et son inventaire, revue « CHOCS AVANCEES » du commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives, numéro 15 d'octobre 2021, page 40 https://www-physique-chimie.cea.fr/science-en-ligne/chocs-avancees.html

[9]
Daniel Clery, Out of Gas, Science, Vol 376, Issue 6600, doi: 10.1126/science.add5489

[10]
Pearson, THE TRITIUM WINDOW: AN OPPORTUNITY FOR ACCELERATED FUSION DEVELOPMENT, Tritium 2022, Book of Abstracts

[11]
IAEA Nuclear Security Series No. 9-G (Rev. 1), Implenting Guide, Security of Radioactive Material in Transport, chapter 3.5 page 24

[12]
K. M. Song, B. W. Ko, K. W. Lee and S. H. Sohn, "Test of a large volume calorimeter in KEPRI tritium laboratory," 2009 23rd IEEE/NPSS Symposium on Fusion Engineering, San Diego, CA, USA, 2009, pp. 1-4

[13]
Monographie CEA numéro 8, l'instrumentation et la mesure en milieu nucléaire, le contrôle des matières nucléaires, Bertrand PÉROT, Fanny JALLU, Christophe ROURE, Sébastien EVRARD, Laurent LOUBET, Pierre-Guy ALLINEI, Danièle ROUDIL, et Nicolas SAUREL, page 164-168

[14]
CHANCE – Characterization of Conditioned Nuclear Waste for its Safe Disposal in Europe - Project funded by the European Commission within the Horizon 2020 Program (2014-2020) - Deliverable D3.2 Calorimeter Delivery – Feb 2020

[15]
F. Bachelet, S. Clouard, A. Lis, R. André, C. Mathonat, «Calorimetry: An NDA method for tritium measurement and accountancy», Fusion Science and Technology, 76, p. 699-702 (2020). https://doi.org/10.1080/15361055.2020.1766273

[16]
S. J. Knipe and al, Tritium Off-gassing Trials on Dust and Flakes from the JET MkIIA Divertor, EFDA–JET–CP(00)01/05

[17]
ASTM C1458-16, Standard Test Method for Non-destructive Assay of Plutonium, Tritium and 241Am by Calorimetric Assay [Report]. - West Conshohocken, United States : ASTM International, 2016.

EC • Ce document est la propriété de KEP Technologies - 03/23

Switzerland - France - China - United States - India - Hong Kong
Contactez-nous: www.setsafesolutions.fr ou setsafe@kep-technologies.com

Setsafe is a registered trademark of KEP Technologies Group