



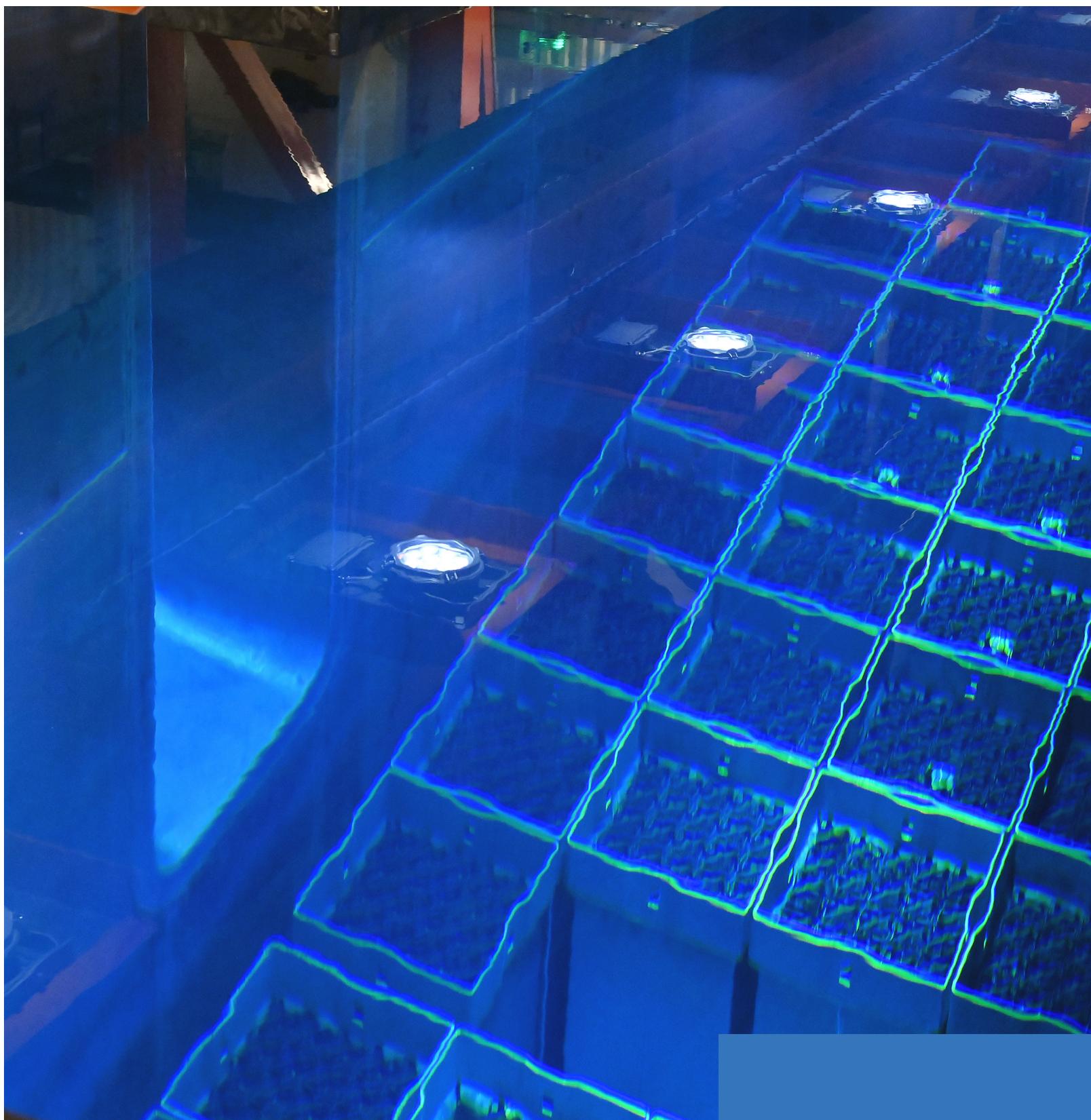
Faire face aux
défis d'une
mesure précise de
l'américium grâce à
la calorimétrie



setsafe
KEP TECHNOLOGIES

Sommaire

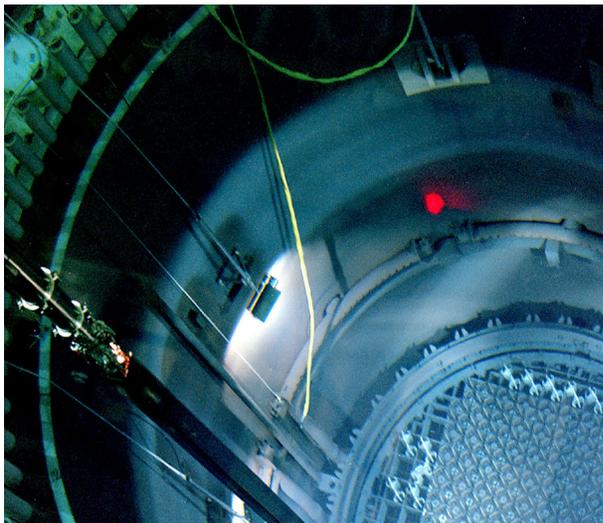
1- Pourquoi caractériser et quantifier la matière et les déchets nucléaires ?	04
2- L'américium, ses sources et utilisations	05
3- La mesure de l'américium : défis et opportunités	08
4- La calorimétrie comme technique de mesure et de quantification de l'américium	10
5- Le principe général de la calorimétrie pour caractériser la matière et les déchets nucléaires	11
6- Le principe spécifique de la mesure d'américium par calorimétrie	14
7- Nos références	16
8- A propos de Setsafe et de KEP Technologies	17
9- Bibliographie	19



Réservoir de combustible usé - Crédit: Dean Calma / AIEA

Faire face aux défis d'une mesure précise de l'américium grâce à la calorimétrie

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 règlements 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'Énergie 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.

23 V Vanadium 50.942	58 Ce Cerium 140.116	54 Xe Xenon 131.293	82 Pb Lead 207.2	15 P Phosphorus 30.974
115 Mc Moscovium 288	47 Ag Silver 107.868	73 Ta Tantalum 180.948	32 Ge Germanium 72.64	114 Fl Flerovium 289
110 Ds Darmstadtium 271	95 Am Americium 243	53 I Iodine 126.904	70 Yb Ytterbium 173.054	31 Ga Gallium 69.723

2. L'américium, ses sources et utilisations

L'américium est un élément chimique de symbole Am et de numéro atomique 95, dont la demi-vie est de 432 ans. Son isotope le plus courant est l'américium-241 (Am-241). En raison de sa radioactivité, l'américium doit être manipulé avec précaution et son utilisation est strictement réglementée afin d'éviter toute exposition inutile aux rayonnements.

Il est considéré comme un déchet radioactif ultime.

Les principales sources d'américium

L'américium est un élément chimique synthétique. Il ne se trouve pas à l'état naturel en quantités significatives sur Terre. Il est produit dans les réacteurs nucléaires et

les accélérateurs de particules en tant que sous-produit de réactions nucléaires impliquant de l'uranium ou du plutonium. La méthode la plus courante pour produire de l'américium consiste à irradier du plutonium 239 (Pu 239) dans un réacteur nucléaire.

Le National Nuclear Laboratory au Royaume-Uni a mis au point une méthode de séparation chimique permettant de produire de manière plus rentable du combustible d'américium sous forme d'oxyde ou de céramique. L'américium est extrait du plutonium stocké après sa séparation lors du retraitement du combustible civil. [2]

Néanmoins, depuis sa première mise en vente, son prix, environ 1 500 dollars par gramme de ^{241}Am , est resté pratiquement inchangé en raison de la complexité de la procédure de séparation.

La production d'américium en France est estimée à 1000 kg par an.

L'américium est généralement stocké sous forme d'oxyde d'américium-241, qui se désintègre avec le temps en émettant des particules alpha. Il est généralement scellé dans un petit conteneur métallique pour éviter sa dispersion dans l'environnement. La forme oxyde permet de contenir la matière radioactive et de fournir une matrice stable pour son stockage.

Les principales utilisations de l'américium

L'utilisation la plus répandue du rayonnement alpha de l'américium est celle des détecteurs de fumée, où il est utilisé en quantités infimes, inférieures à un microgramme. Le rayonnement alpha ionise l'air, ce qui permet à un courant électrique de circuler entre deux électrodes. Lorsque la fumée pénètre dans le détecteur, elle perturbe ce courant et déclenche l'alarme. [3]

L'américium 241 est également utilisé comme source indirecte de neutrons rapides [3]:

- L'américium produit des neutrons rapides lorsqu'il est associé au béryllium. Il s'agit d'une source de neutrons rapides extrêmement bon marché et pratique par rapport aux réacteurs nucléaires ou aux accélérateurs de particules, qui peut être utilisée dans des outils de diagnostic portatifs.



Test d'un rover pour la mission Exomars de l'ESA - Crédit : ESA - S. Corvaja

- Les neutrons rapides ont une application importante dans les humidimètres à neutrons, qui sont parmi les appareils les plus précis disponibles pour mesurer la teneur en eau du sol dans l'industrie de l'exploration pétrolière et gazière.
- La source de neutrons Am-Be est également utilisée dans des techniques d'imagerie telles que la radiographie et la tomographie neutroniques, qui utilisent des neutrons rapides à la place des rayons X.



Prototype d'unité de chauffage à radioisotope (RHU) développé par l'Université de Leicester pour l'Agence spatiale européenne.
Crédit : ESA - G. Porter

L'américium 241 est une source de chaleur constante qui peut être exploitée :

- soit directement dans des unités de chauffage à radioisotope (RHU, Radioisotope Heater Units en anglais) qui fournissent une chaleur localisée pour maintenir des composants dans une plage de température requise,
- soit indirectement pour la production d'électricité grâce aux générateurs thermoélectriques à radioisotope (Radio-isotopic Thermal Generator en anglais).

En effet, un conteneur d'américium, s'il est mis en contact avec des éléments thermoélectriques, peut générer un courant de façon autonome et sur de très longues durées.

La technologie des RTG est applicable pour la fourniture d'électricité dans des zones non couvertes par le réseau électrique et nécessitant une alimentation constante sur de très longues durées.

C'est par exemple le cas du Centre Industriel de Stockage Géologique Cigéo pour les déchets radioactifs à haute activité et vie longue.

En effet, son système d'observation et de surveillance nécessite d'alimenter des capteurs installés à 500 mètres de profondeur, dans les alvéoles de stockage des déchets radioactifs, pendant une période de 100 ans au moins.

Orano pilote un projet sous l'égide de l'ANDRA [4] concernant le développement de générateurs thermoélectriques à radioisotope basés sur des sources d'américium 241.

Des RHU et RTG utilisant l'américium 241 comme source de chaleur sont également en cours de développement pour des applications spatiales.

Dans le cadre d'un programme financé par l'agence spatiale européenne, ils permettraient de lancer et d'exploiter des missions spatiales et planétaires profondes, où l'utilisation de l'énergie solaire ou d'autres technologies de production d'énergie s'avère difficile. [5].

3.

La mesure de l'américium : défis et opportunités

Les besoins en matière de surveillance dans le contexte de la gestion des matières et des déchets radioactifs sont détaillés dans l'introduction de ce document. La gestion de l'américium 241 pose plusieurs problèmes particuliers en raison de :

- sa longue durée de vie qui a pour conséquence le fait qu'il demeure radioactif pendant une longue période,
- son activité élevée, égale à $1,27 \cdot 10^{11}$ Bq/g et impliquant une émission de rayonnements alpha et gamma, qui constitue un risque radiologique important.

Ainsi il est crucial de réaliser des inventaires et de soigneusement gérer les quantités d'américium 241 pour éviter les risques de pertes et de détournement de sources de ce radionucléide à des fins hostiles.

Par ailleurs, à la fin de la durée de vie opérationnelle d'une installation, la caractérisation et la quantification des déchets contenant de l'américium sont nécessaires pour les orienter vers les bonnes filières, telles que le stockage géologique à long terme.

Mais les défis à relever dans le cadre d'une utilisation de l'américium 241 pour des applications telles que celles citées au chapitre 2 sont également nombreux.

En effet, le coût de l'américium est estimé à 1 500 dollars par gramme, sans même tenir compte des dépenses conséquentes liées à son transport.



Si les détecteurs de fumée n'emploient que quelques microgrammes de matière, les applications dans les RHU et les RTG impliquent des masses de quelques dizaines de grammes à quelques kilogrammes selon la puissance visée.

La précision des mesures des quantités d'américium échangées entre le producteur et l'utilisateur est donc cruciale car elle a un impact économique direct. La moindre incertitude de mesure se traduirait par une sous-estimation ou une surestimation qui désavantagerait fortement l'une ou l'autre partie.

Pour finir, et dans le strict cadre des Radioisotopes Heating Units, la mesure calorimétrique est utile à la vérification de l'adéquation entre la puissance thermique visée lors de la conception et la chaleur réellement émise par la source fabriquée.

Manipulation d'un RTG - NASA

Faire face aux défis d'une mesure précise de l'amiéricium grâce à la calorimétrie

4.

La calorimétrie comme technique de mesure et de quantification de l'américium

La calorimétrie est une technique basée sur la mesure de la chaleur dégagée par un colis de matières ou de déchets radioactifs. Elle est réputée très fiable, notamment pour caractériser l'américium, le tritium ou le plutonium.

Elle présente en effet des avantages intéressants pour ces mesures :

1. La mesure est non destructive et effectuée sur l'ensemble du conteneur, elle est donc représentative.
2. La calorimétrie permet une précision de mesure des quantités d'américium meilleure que $0,2 \pm 0,6 \%$ [6], et est donc considérée comme la plus fiable des techniques d'analyse non destructive de l'américium.
3. La calorimétrie peut être utilisée sur n'importe quel type de matrice ou de matériau, car ses résultats de mesure ne sont pas influencés par ceux-ci [7].
4. La mesure calorimétrique ne dépend pas de la géométrie de l'objet ni de la forme chimique du radioélément [8].

Le principe des mesures calorimétriques et leur utilisation pour la quantification de l'américium 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.

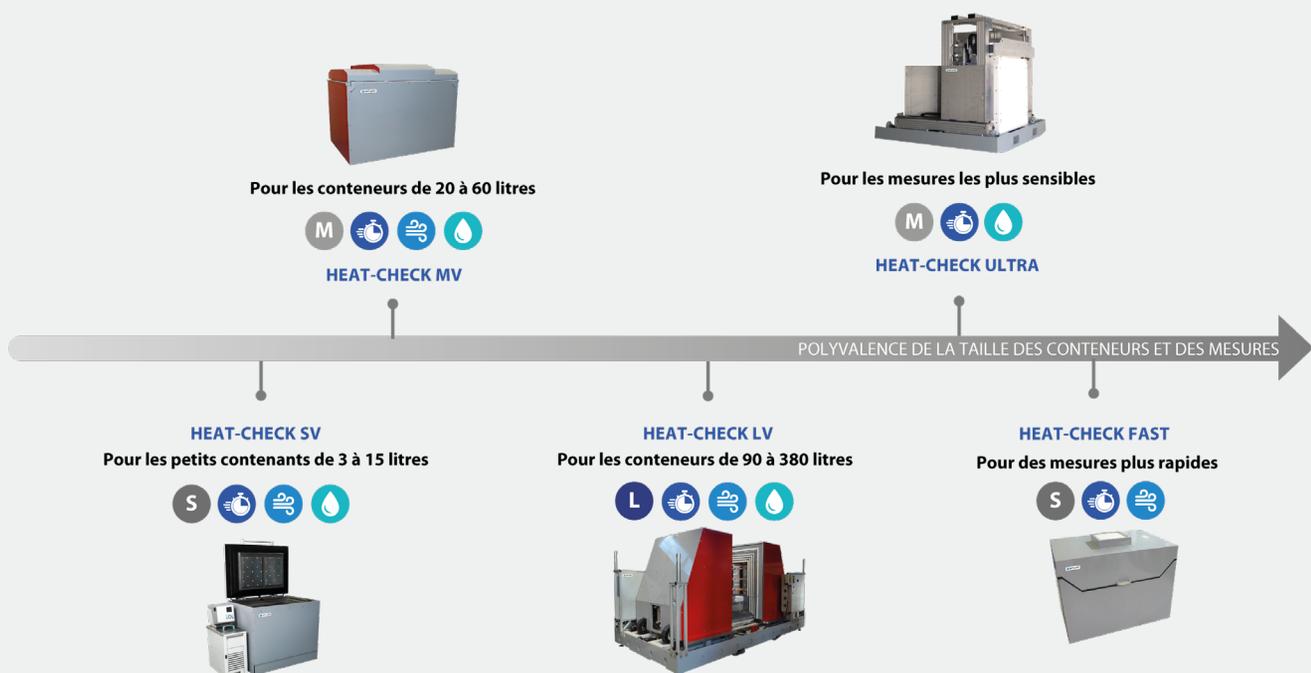


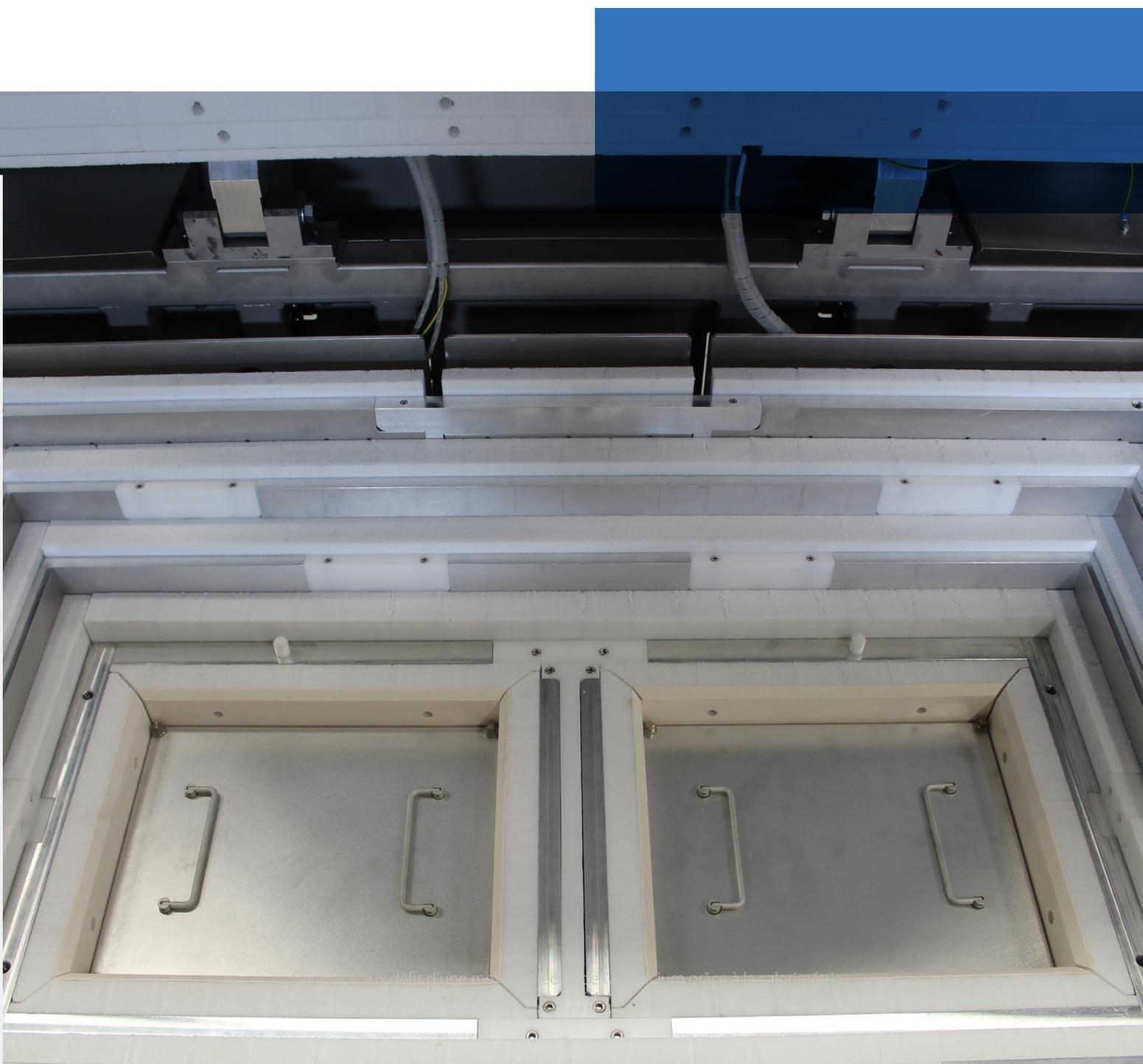
Illustration - Représentation de la gamme de calorimètres Setsafe. Les modèles diffèrent en termes de capacité, de volume des récipients mesurables, de limites de détection et de temps de mesure.

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.



6.

Le principe spécifique de la mesure d'américium par calorimétrie

L'américium émet principalement un rayonnement alpha de 5 486 keV ainsi qu'un rayonnement gamma de 60 keV. Si ses parois sont suffisamment épaisses, un conteneur métallique dans lequel est placée une source d'américium 241 est capable de collecter l'intégralité de l'énergie déposée par ses rayonnements.

En l'absence de toute autre source de chaleur, la puissance thermique dégagée par un conteneur d'américium 241 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 de

l'américium 241 est égale à 0,1142 watts par gramme [6].

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

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

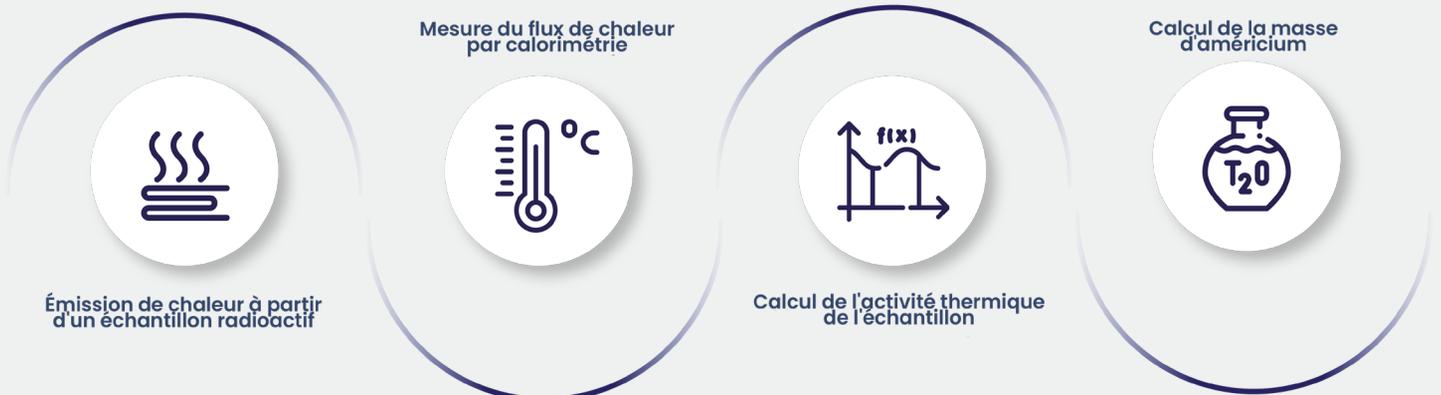


Illustration - Principe de la mesure par calorimétrie

Un colis d'américium 241 générant une puissance thermique mesurée de 11,42 milliwatts contient donc 0,1 grammes d'américium 241.

Typiquement, la calorimétrie s'applique à des mesures de quantités d'américium 241 de moins d'un gramme à quelques centaines de grammes [9].

Activity is calculated as follows:

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

L'activité massique étant égale à $1,27 \cdot 10^{11}$ Bq/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 d'américium 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 National Nuclear Laboratory à Sellafield, au Royaume Uni, qui a utilisé la calorimétrie pour vérifier la pureté d'échantillons obtenus à partir d'un procédé de séparation de l'américium 241 contenu dans du dioxyde de plutonium, lui-même issu du recyclage de combustible nucléaire usé [10].



Aux Etats-Unis, le Los Alamos National Laboratory a appliqué la calorimétrie à la mesure d'américium 241 contenu dans des résidus issus de procédés de purification du plutonium métal par extraction à l'aide de sels fondus [11].

Plus généralement, La calorimétrie est considérée comme étant complémentaire des techniques conventionnelles de contrôle non destructif en mesure nucléaire.

Son utilisation dans la mesure de l'américium n'est pas limitative : elle est par ailleurs largement utilisée pour la quantification de radioéléments tels que le tritium, le strontium ou le plutonium [8]. La norme ASTM C1458-16 [6] 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 de quantités de tritium gazeux dans les conteneurs.

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



7.

Nos références

Utilisateurs et témoignages

"D'une manière générale, la calorimétrie présente de nombreux avantages : elle est non intrusive, non destructive, ne dépend pas de la géométrie de l'objet ou de la forme chimique de l'élément radioactif, et ne nécessite aucun prélèvement ou préparation d'échantillon, ce qui la rend particulièrement intéressante pour quantifier les inventaires de matières nucléaires." [8]

"L'analyse calorimétrique offre plusieurs avantages distincts par rapport à d'autres techniques non destructives et d'analyse chimique" [9].

"La mesure calorimétrique est utilisée régulièrement depuis 40 ans dans les installations américaines et européennes pour mesurer le processus de production du plutonium et l'inventaire des matières nucléaires" [12].

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 - West Conshohocken, United States : ASTM International, 2016.

8. A propos de nous

KEP Technologies

KEP Technologies est un groupe industriel familial créé en 1996. KEP Technologies est une entreprise de taille moyenne avec plus de 400 employés et un chiffre d'affaires de plus de 50 millions d'euros.

Tourné vers l'international grâce à sa présence industrielle et commerciale sur les 5 continents, il propose à ses clients des solutions industrielles et technologiques sur des marchés très variés : aéronautique, espace, santé, recherche, défense, sécurité, énergie, environnement, transport, luxe...

Le groupe KEP Technologies, à travers ses différentes marques, compétences et activités, accompagne ses clients du secteur nucléaire pour relever leurs défis.

Ceux-ci nécessitent la mise en œuvre de solutions spécifiques qui font appel à des expertises, des capacités d'innovation, des compétences diversifiées, des certifications (CEFRI) et la maîtrise des méthodes de gestion de projet.

Setsafe

A travers 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 pour fournir des solutions standard ou personnalisées afin de répondre aux défis liés à la mesure de la radioactivité.

Notre expertise

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

KEP Technologies détient deux brevets concernant la calorimétrie pour la caractérisation des matériaux et déchets radioactifs :

☑ EP2946184 DIFFERENTIAL CALORIMETER FOR HEAT FLOW MEASUREMENT en copropriété avec le Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives français

☑ FR3028948 CALORIMETER FOR MEASURING A QUANTITY OF ACTIVE MATERIAL



9.

Bibliographie

[1]

<https://www.iaea.org/sites/default/files/publications/documents/infcircs/1972/infcirc153.pdf>

[2]

M. Sarsfield, J. Brown, C. Campbell et al., Prog. Nucl. Energy 106, 396–416 (2018). <https://doi.org/10.1016/j.pnucene.2018.02.008>

[3]

<https://discover.lanl.gov/publications/actinide-research-quarterly/first-quarter-2023/united-states-of-amerium/>

[4]

<https://www.andra.fr/transformer-la-chaleur-en-electricite-afin-dalimenter-des-capteurs-sans-fil-sur-plusieurs-decennies>

[5]

Ambrosi et al., Space Sci Rev (2019) 215:55 <https://doi.org/10.1007/s11214-019-0623-9>

[6]

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

[7]

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

[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]

D. S. Bracken et al, Application Guide to Safeguards Calorimetry, LA-13867-M Manual, 2002

[10]

M.J. Sarsfield et al, E3S Web of Conferences 16, 05003 (2017), DOI: 10.1051/e3sconf/20171605003

[11]

V. L. Longmire et al, "Isotopic Ratios and Effective Power Determined by Gamma-Ray Spectroscopy vs. Mass Spectroscopy for Molten Salt Extraction Residues," Nuclear Materials Management, Vol XXXI Proceedings Issue, 1990

[12]

D. S. Bracken, and C. R. Rudy, Principles and applications of calorimetric assay, https://cdn.lanl.gov/files/10-calorimetry_41ed9.pdf



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

VS • Ce document est la propriété de KEP Technologies - 12/24