

ANALYSE QUALITATIVE ET QUANTITATIVE DU PLUTONIUM DANS LES FÛTS DE DECHETS SOLIDES

J. ANNO et E. ESCARIEUX
Commissariat à l'Energie Atomique
Centre d'Etudes de Bruyères-le-Châtel (FRANCE)

I - INTRODUCTION

Pour gérer les déchets radioactifs au Centre d'Etudes de Bruyères-le-Châtel nous utilisons une méthode d'analyse qualitative et quantitative du plutonium dans les fûts de déchets solides par spectrométrie gamma. Après avoir décrit le procédé et l'instrumentation utilisés, nous présentons les expériences réalisées et les résultats acquis. Nous précisons les performances atteintes et nous les comparons à celles obtenues par la mesure des neutrons de fission spontanée du ^{240}Pu .

2 - METHODE (1) (2) (3)

L'utilisation d'un système mécanique, permettant de placer le fût dans la position voulue par rapport au détecteur, et d'une collimation appropriée de ce dernier, permet l'analyse d'un fût en plusieurs parties. Un bon compromis entre le temps de comptage et la précision obtenue conduit à procéder par "comptage en deux positions". Outre l'identification des radioéléments, la spectrométrie gamma permet l'identification isotopique du plutonium.

L'évaluation quantitative du plutonium est faite en deux temps :

- . Le poids de plutonium correspondant au taux de comptage mesuré est lu sur une courbe d'étalonnage.
- . Le poids de plutonium présent dans le fût se déduit de ce relevé en lui appliquant une correction tenant compte de la matrice du fût et du nombre de positions utilisées pour l'analyse.

Un abaque indique l'erreur statistique en fonction de la masse de Pu et du temps de comptage.

3 - DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Système mécanique : Le plateau permet d'amener le fût dans la position de comptage voulue; il tourne à la vitesse de 7,5 tours par minute. Le mouvement d'élévation et de descente lui est communiqué par un vérin actionné par une centrale hydraulique.

Chafne de spectrométrie : Le détecteur est un GeLi de 90 cm³, 20 % d'efficacité relative et 2,3 keV de résolution sur le pic de 1,33 MeV du Cobalt 60. La chafne électronique comprend le préamplificateur, un amplificateur ORTEC modèle 472 et un codeur Intertechnique CT 103. L'analyse et le traitement du signal sont faits par un PLURIMAT 20 Intertechnique et télétype. Nous utilisons en périphériques un lecteur rapide I.E.R., un perforateur rapide FACIT et un traceur de courbe RA 102.

4 - ETUDE EXPERIMENTALE

4.1 - Détermination de la composition isotopique (4)

Le ^{240}Pu a des raies à 104 et à 160 keV généralement en interférence avec les raies des autres isotopes; sa quantité est fonction de la composition isotopique. Considérons dans un spectre deux raies d'énergies proches; elles subissent pratiquement les mêmes absorption et autoabsorption. Le rapport de leurs intensités s'écrit :

$$\frac{I_{E_i}}{I_{E_j}} = K_{ij} \cdot \frac{f_i}{f_j}$$

f_i : teneur du Pu en isotope i
 f_j : teneur du Pu en isotope j
 K_{ij} : constante connue pour une installation

A une composition isotopique donnée du plutonium d'origine déterminée, ne correspond qu'une valeur du rapport $\frac{I_{E_i}}{I_{E_j}}$; la figure 1 montre la variation expérimentale de ce rapport en fonction de la teneur en ^{240}Pu .

4.3 - Mesure du plutonium selon un comptage en deux positions :

Au taux de comptage mesuré \mathcal{C} de la raie à 375 keV correspond un poids de Pu apparent, P_0 , lu sur la courbe d'étalonnage, figure 2. L'étalonnage a été réalisé en plaçant les sources à l'intersection de la normale au détecteur ($z = 0$) et de l'axe du fût en rotation ($r = 0$). Il faut donc tenir compte du fait que les déchets occupent des positions quelconques dans le fût. La figure 3 montre la variation du rapport $\mathcal{C}(r, z)/\mathcal{C}(r = 0, z = 0)$ à $r = 0$, $r = 15$ cm et $r = 27$ cm. Successivement en faisant la somme correspondante aux deux positions et pour nos conditions de mesure, la valeur moyenne obtenue vaut $R_p = 0,85$. Nous devons également tenir compte de l'absorption T de la raie à 375 keV dans la matrice de remplissage du fût. Pour cela nous faisons l'hypothèse que nous sommes en présence d'une matrice vinylique homogène. Une étude de nos déchets et une vérification expérimentale du type de la figure 4, ont montré que notre hypothèse était vérifiée pour 65 % de nos fûts de déchets. Finalement le poids de Plutonium présent dans le fût s'exprime par :

$$P = P_0 \cdot \frac{1}{R_p} \cdot \frac{1}{T}$$

5 - PRECISION - PERFORMANCES

La masse de plutonium 239 dans un fût dont le contenu est assimilé à du vinyle, peut être exprimée par la relation approchée suivante :

avec \mathcal{C} : taux de comptage de la raie à 375 keV

$$m = \left(\frac{\mathcal{C}}{k}\right) \cdot \frac{1}{R_p \cdot T}$$

k, α : Coefficient de la courbe d'étalonnage assimilée
 R_p : Rendement global moyen
 T : Transmission de la raie à 375 keV

Pour une matrice vinylique homogène, les erreurs commises sont :

Erreur systématique : elle est de l'ordre de 18 % qui se répartissent ainsi :

. Incertitude sur la courbe d'étalonnage : $+ 10 \%$
 . Incertitude sur la transmission T : $\frac{\Delta T}{T} = 2 \%$
 . Incertitude sur le rendement global moyen R_p : $\frac{\Delta R_p}{R_p} = 6 \%$

Erreur statistique :

De l'expression de m , on tire : $e = \frac{\Delta m}{m} \gg \sqrt{\frac{1}{k} \cdot \frac{1}{t m}}$

Cette relation nous donne l'incertitude statistique probable e en fonction de la masse de Pu à mesurer pour un temps déterminé, figure 5. On en déduit le temps de comptage pour une erreur statistique fixée, en fonction de la masse limite à déterminer.

Par exemple on peut détecter 32 mg de Pu dans un fût de 200 l. avec une erreur totale de 30 % (18 % d'erreur systématique et 12 % d'erreur statistique) en 15 mn de comptage ou 3,2 g avec une erreur de 20 % (18 % d'erreur systématique et 2 % d'erreur statistique) en 5 mn de comptage.

6 - COMMENTAIRES SUR L'ANALYSE PAR SPECTROMETRIE GAMMA

La méthode d'analyse par spectrométrie gamma est insuffisante pour les fûts à matrice lourde ou inhomogène (35 % de nos fûts de déchets) du fait de l'erreur commise sur la valeur de la transmission.

On peut alors avoir recours à la méthode d'analyse par mesure des neutrons de fission spontanée (5) et (6). Selon (6) et dans les conditions d'installation décrite, une telle mesure permet de détecter 10 mg de plutonium 240, dans un fût de 100 l, en 1 mn de comptage avec une erreur de 20 à 30 %. Cette mesure neutron est donc rapide mais la spectrométrie gamma demeure indispensable pour l'identification de la teneur isotopique toujours nécessaire.

La figure 6 illustre une comparaison expérimentale, effectuée sur un lot de 10 fûts de 100 l. entre les deux méthodes. Elles donnent des résultats généralement concordants pour les contenus en plutonium faibles et moyens. Des écarts notables existent pour les contenus élevés, de 20 à 50 g de Pu. L'écart extrême est obtenu sur un fût à matrice lourde.

Les deux méthodes s'avèrent remarquablement complémentaires :

. La méthode neutron bien adaptée pour matrice lourde et mesure du ^{240}Pu
. La méthode gamma bien adaptée pour matrice légère et mesure du ^{239}Pu
Les erreurs sont du même ordre de grandeur. Plutôt que concurrents les deux méthodes sont nécessaires pour traiter l'ensemble des fûts de déchets d'un centre nucléaire.

7 - CONCLUSION

La limite de détection de notre installation de contrôle des déchets par spectrométrie gamma est de 25 mg de plutonium 239 dans un fût de 200 l. avec une probabilité correspondant à 3 σ .

On a intérêt à disposer d'un détecteur de gros volume afin de diminuer le temps de comptage; ce dernier n'est pas trop prohibitif lorsqu'il est voisin de 10 mn compte tenu de ce qu'il faut par ailleurs de l'ordre de 45 mn pour traiter un fût depuis sa position de pré-stockage jusqu'à son évacuation. Dans ces conditions et pour un amortissement du matériel calculé sur 5 ans, le traitement d'un fût, analyse comprise, coûte environ 250 francs.

La méthode d'analyse des déchets par spectrométrie gamma est bien adaptée à la mesure du plutonium pour des fûts à matrice légère et homogène. Elle est insuffisante et hasardeuse pour les fûts à matrice lourde ou inhomogène; elle demeure indispensable à la détermination isotopique nécessaire pour une analyse par mesure neutron à laquelle il faut alors faire appel.

REFERENCES

- (1) BIRKHOFF G et Al. EUR/S/IS/123/76 - Janv. 76. Guide to monitoring of plutonium contaminated solid waste streams.
- (2) CLINE S. E. - ANCR 1055 - A relatively simple and precise technique for the assay of plutonium waste (72)
- (3) AUGUSTON RH et REILLEY TD - LA 5651 M - Fundamentals of passive non destructive assay of fissionable material (1974)
- (4) GOUGUET - Rapports CEA R 4399 - R 4666
- (5) BERG R. et Al - EURATOM Report - EUR 5158e ISPRA 1974
- (6) ARNAL T et Al. - Détermination de la teneur en plutonium dans les fûts de déchets solides - Séminaire sur la gestion des déchets solides contaminés par du Pu - Marcoule (14-16 Octobre 1974)

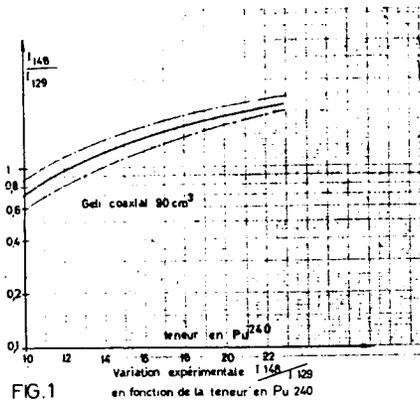


FIG. 1

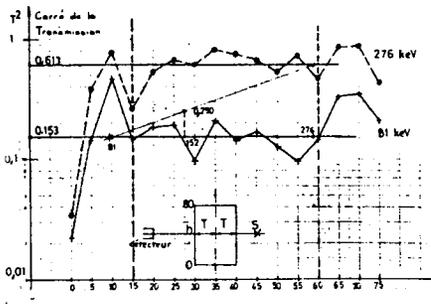


FIG. 4

TRANSMISSION D UN FUT contenant du Pu 238 en fonction de la position de la source de Ba par rapport a la base du fut

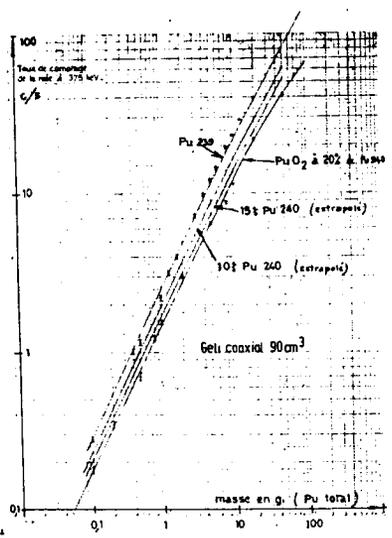


FIG. 2 ETALONNAGE EN PLUTONIUM

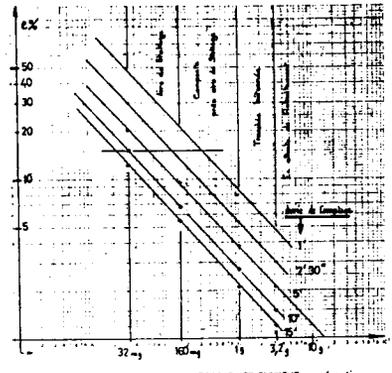


FIG. 5

VARIATION DE L'ERREUR STATISTIQUE en fonction de la masse de Pu et du temps de comptage

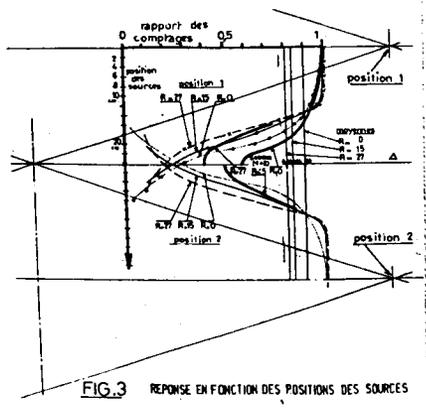


FIG. 3 REPONSE EN FONCTION DES POSITIONS DES SOURCES

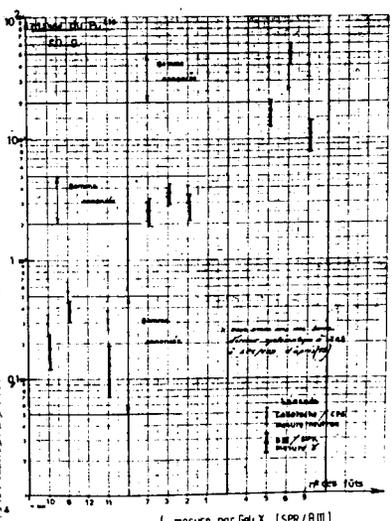


FIG. 6 COMPARAISON

mesure par GeLi X (SPR/BIII)
mesure par neutron (LPC/CAO)