

PREMIER MINISTRE

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE

8.2

MESURES CALORIMETRIQUES
DE FORTES SOURCES D'EMETTEURS γ

par

*Bernard BRANGIER, Christiane HERCZEG,
Robert HENRY*

DIRECTION DES MATERIAUX

ET COMBUSTIBLES NUCLEAIRES

Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay

Rapport CEA - R - 3502

1968

Ba

SERVICE CENTRAL DE DOCUMENTATION DU C.E.A

C.E.N. - SACLAY B.P. n°2, 91 - GIF-sur-YVETTE - France

CEA-R-3502 - BRANGIER Bernard, HERCZEG Christiane,
HENRY Robert

MESURES CALORIMETRIQUES DE FORTES SOURCES
D'EMETTEURS γ

Sommaire. - Cette publication donne le principe et décrit un calorimètre adiabatique pour la mesure de l'activité réelle de fortes sources d'émetteurs γ , obtenue par l'absorption de l'énergie émise dans une masse de cuivre. La difficulté d'évaluer la valeur de l'autoabsorption nous a conduits à la construction d'un calorimètre pour la mesure de l'autoabsorption qui est également décrit.

Les résultats de ces trois mesures sont assez satisfaisantes. L'étalonnage et les mesures réelles obtenues sont données avec quelques corrections rendues nécessaires par

. / .

CEA-R-3502 - BRANGIER Bernard, HERCZEG Christiane,
HENRY Robert

CALORIMETRIC MEASUREMENTS OF STRONG
 γ -EMITTING SOURCES

Summary. - This publication gives the principle and a description of an adiabatic calorimeter for measuring the real activity of strong γ -emitting sources by absorbing the emitted energy in a mass of copper. Because of the difficulty of evaluating the amount self-absorption, we have built a calorimeter for measuring the self-absorption, and a description of it is given.

The results of these three measurements are fairly satisfactory. The calibration and the actual measurements obtained are given with a few corrections made necessary by the

la conception des appareils. La corrélation des divers résultats est discutée.

1968

20 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

design of the apparatus. The correlation of the various results is discussed.

1968

20 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

A partir de 1968, les rapports CEA sont classés selon les catégories qui figurent dans le plan de classification ci-dessous et peuvent être obtenus soit en collections complètes, soit en collections partielles d'après ces catégories.

Ceux de nos correspondants qui reçoivent systématiquement nos rapports à titre d'échange, et qui sont intéressés par cette diffusion sélective, sont priés de se reporter à la lettre circulaire CENS/DOC/67/4090 du 20 décembre 1967 que nous leur avons adressée, et qui précise les conditions de diffusion.

A cette occasion nous rappelons que les rapports CEA sont également vendus au numéro par la Direction de la Documentation Française, 31, quai Voltaire, Paris 7e.

PLAN DE CLASSIFICATION

- | | |
|---|---|
| 1. APPLICATIONS INDUSTRIELLES DES ISOTOPES ET DES RAYONNEMENTS | 8. PHYSIQUE |
| | 8.1 Accélérateurs |
| | 8.2 Electricité, électronique, détection des rayonnements |
| | 8.3 Physique des plasmas |
| | 8.4 Physique des états condensés de la matière |
| | 8.5 Physique corpusculaire à haute énergie |
| | 8.6 Physique nucléaire |
| | 8.7 Electronique quantique, lasers |
| 2. BIOLOGIE ET MEDECINE | 9. PHYSIQUE THEORIQUE ET MATHEMATIQUES |
| 2.1 Biologie générale | |
| 2.2 Indicateurs nucléaires en biologie | |
| 2.3 Médecine du travail | |
| 2.4 Radiobiologie et Radioagronomie | |
| 2.5 Utilisation des techniques nucléaires en médecine | |
| 3. CHIMIE | 10. PROTECTION ET CONTROLE DES RAYONNEMENTS, TRAITEMENT DES EFFLUENTS |
| 3.1 Chimie générale | |
| 3.2 Chimie analytique | |
| 3.3 Procédés de séparation | |
| 3.4 Radiochimie | |
| 4. ETUDES DU DOMAINE DE L'ESPACE | 10.1 Protection sanitaire |
| | 10.2 Contrôle des rayonnements |
| | 10.3 Traitement des effluents |
| 5. GEOPHYSIQUE, GEOLOGIE, MINERALOGIE ET METEOROLOGIE | 11. SEPARATION DES ISOTOPES |
| 6. METAUX, CERAMIQUES ET AUTRES MATERIAUX | 12. TECHNIQUES |
| 6.1 Fabrication, propriétés et structure des matériaux | 12.1 Mécanique des fluides - Techniques du vide |
| 6.2 Effets des rayonnements sur les matériaux | 12.2 Techniques des températures extrêmes |
| 6.3 Corrosion | 12.3 Mécanique et outillage |
| 7. NEUTRONIQUE, PHYSIQUE ET TECHNOLOGIE DES REACTEURS | 13. UTILISATION ET DEVELOPPEMENT DE L'ENERGIE ATOMIQUE |
| 7.1 Neutronique et physique des réacteurs | 13.1 Centres d'études nucléaires, laboratoires et usines |
| 7.2 Refroidissement, protection, contrôle et sécurité | 13.2 Etudes économiques, programme |
| 7.3 Matériaux de structure et éléments classiques des réacteurs | 13.3 Divers (documentation, administration, législation, etc...) |

Les rapports du COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE sont, à partir du n° 2200, en vente à la Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 31, quai Voltaire, PARIS VIIème.

The C.E.A. reports starting with n° 2200 are available at the Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 31, quai Voltaire, PARIS VIIème.

- Rapport CEA-R-3502 -

Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay
Direction des Matériaux et Combustibles Nucléaires
Département des Radioéléments
Service de Préparation des Radioéléments

MESURES CALORIMETRIQUES DE FORTES SOURCES D'EMETTEURS γ

par

Bernard BRANGIER, Christiane HERCZEG, Robert HENRY

- Mai 1968 -

MESURES CALORIMETRIQUES DE FORTES SOURCES D'EMETTEURS γ .

Introduction.

La mesure de fortes sources d'émetteurs γ est un problème difficile pour plusieurs raisons, les instruments habituels convenant en effet assez mal :

Les chambres d'ionisation à puits peuvent difficilement mesurer des quantités supérieures à 1 000 Ci de cobalt 60.

La mesure de sources par chambre d'ionisation de petite dimension (la source étant à une certaine distance de la chambre) est compliquée par le fait que le rayonnement diffusé est souvent difficile à estimer, ou à éliminer.

Enfin, toutes ces mesures par chambre d'ionisation ne permettent pas de connaître le contenu réel en curies d'une source, mais seulement le contenu apparent. Or cette mesure du contenu réel en curies est une valeur extrêmement utile, d'une part pour pouvoir estimer, en fonction de la géométrie d'une source, le pourcentage d'auto-absorption, d'autre part pour évaluer la valeur commerciale de la source.

Pour ces raisons, les mesures calorimétriques, qui deviennent très faciles pour des valeurs où les chambres d'ionisation deviennent d'emploi difficile, nous ont paru présenter un grand intérêt et nous avons cherché à réaliser un calorimètre permettant la mesure de sources de cobalt (ou équivalent) de 1 000 à 10 000 Ci.

La mise au point d'un tel appareil présentait en outre l'intérêt de permettre des recoupements entre les valeurs estimées par les chambres d'ionisation et des mesures ayant un caractère plus absolu.

I - CALORIMETRE γ .

Principe et description de l'appareil.

Il est apparu très vite qu'un calorimètre adiabatique nous permettrait de faire des mesures rapides avec un appareil relativement simple.

Il s'agissait donc de construire un bloc où la majeure partie du rayonnement γ pourrait être absorbée et de mesurer l'échauffement consécutif à cette absorption.

Pour des raisons de conductibilité thermique, de densité et de prix, le cuivre a été choisi pour constituer ce bloc (fig. 1).

L'épaisseur choisie de 85 mm permet d'absorber plus de 98 % de l'énergie émise par le cobalt 60. Un facteur de correction tiendra compte des 2 % non absorbés.

Le volume utile est un cylindre de 40 mm de diamètre et de 110 mm de hauteur (un deuxième calorimètre aura un volume utile de même forme avec un diamètre de 40 et une hauteur de 310 mm).

Le bloc de mesure se présente donc finalement sous la forme d'un cylindre de 210 mm de diamètre et de 280 mm de hauteur pesant 85 Kg.

L'élévation de température est mesurée à l'aide de 20 thermocouples montés en série et disposés sur 3 couronnes le long du cylindre. Ces thermocouples sont enfoncés de quelques mm dans la masse du cuivre.

L'adiabaticité est obtenue en entourant le cylindre de cuivre de 35 mm d'isolant (polystyrène expansé). Cet isolement thermique est suffisant pour assurer un caractère adiabatique pour un temps convenable, comme nous le verrons plus tard (fig. 2).

Le problème des thermocouples de référence a été difficile à résoudre ; il était nécessaire de les maintenir à température constante et pour cette raison le bloc calorimétrique déjà décrit est placé dans une enceinte thermostatée constituée d'une caisse en bois doublée de polystyrène expansé.

La constance de la température est obtenue par une résistance commandée par un thermomètre à contact. Un ventilateur assure une répartition homogène de l'air. Il a été également nécessaire de placer les thermocouples de référence dans des plaquettes de laiton donnant une certaine inertie thermique aux thermocouples, ceci afin d'éviter les perturbations périodiques apportées par la régulation thermique par tout ou rien. Celle-ci se fait à une température supérieure à l'ambiante (40 °C environ).

Enfin, le calorimètre présentant un très long temps de retour à la température ambiante, il a été nécessaire de prévoir un refroidissement par air à l'aide d'un serpentin en cuivre fixé sur la partie supérieure du bloc de cuivre.

Etalonnage par effet Joule.

L'appareil ainsi constitué a été étalonné par effet Joule. La résistance était montée sur un bouchon spécial percé de deux trous par où passent les fils conducteurs. En supposant que nous sommes en présence d'un calorimètre parfaitement adiabatique, l'élévation de température moyenne du bloc de cuivre est donnée par la relation :

$$\Delta \theta = \frac{P.W}{C.M} \quad (1)$$

P est la puissance de la source de chaleur

C la chaleur spécifique du cuivre

M la masse du cuivre.

La courbe I de la fig. 3 donne les valeurs d'élévation de température obtenues pour différentes puissances.

La fig. 4 est un exemple type des enregistrements obtenus à l'aide d'un millivoltmètre enregistreur. On voit très nettement qu'après un temps d'induction assez court (10 minutes), la variation de température en fonction du temps est représentée par une droite. Même à la fin de la mesure, c'est-à-dire après plus d'une heure, aucun fléchissement ne permet d'estimer que le caractère adiabatique du calorimètre n'est conservé.

Si l'on estime que l'élévation de température est mesurée directement par l'angle formé par cette droite avec la ligne de base, on obtient une courbe d'étalonnage qui est la courbe II de la fig. 3. La valeur $\Delta \theta$ est déduite de l'étalonnage des thermocouples qui permet de donner une valeur en degré centigrade à la tangente de l'angle AO'A'. Cette courbe d'étalonnage est une droite, comme l'est la courbe I théorique, mais l'on s'aperçoit d'un décalage d'environ 15 % entre la courbe expérimentale et la courbe théorique. Ce décalage paraît normal et a plusieurs causes :

- d'une part, la courbe théorique est établie en fonction d'une température moyenne du bloc calorimétrique, alors que la courbe II est établie en fonction d'une température en surface,
- d'autre part, les mesures de température de la courbe II n'ont pas été effectuées sur l'ensemble de la surface, mais seulement sur certains points qui ne représentent pas obligatoirement la moyenne idéale de température en surface.
- enfin certaines caractéristiques spécifiques de mesures, dont est tirée la courbe II, sont difficiles à contrôler, par exemple : les caractéristiques propres à la source de chaleur.

Il est possible de corriger facilement les erreurs dues à la première des causes indiquées.

Si nous considérons l'enregistrement de la fig. 4, nous nous apercevons que la mesure de l'élévation de température telle que nous l'avons pratiquée sur la courbe II a été mal faite. En effet, nous avons mesuré la différence de température existant entre le temps $t = 0 + x$, ($t = 0$ étant le temps de début de chauffage), et le temps $t' = t + y$, (t étant le temps pendant lequel le chauffage de la résistance étalonnage a eu lieu), x et y étant des valeurs mal définies.

En fait, la différence de température doit être prise uniquement entre le temps $t = 0$ et le temps $t = \Delta t$, c'est-à-dire entre les points 0 et A de la courbe d'enregistrement.

Cependant, si l'on trace la droite OA', une autre erreur sera commise, en raison de l'inertie thermique de l'ensemble constitué par la source de chaleur et le bloc calorimétrique. Il nous faut, en effet, attendre que la température soit égalisée partout pour avoir une mesure comparable à celle de la courbe I.

L'inertie thermique de l'ensemble se manifeste par une montée de température après la fin de chauffage telle que l'indique la portion d'enregistrement comprise entre A' et C. On peut estimer qu'en C la température est homogène dans l'ensemble, mais à ce moment là l'effet dû à une légère perte thermique se manifeste déjà, effet que nous pouvons compenser en traçant la tangente en C à la courbe d'enregistrement.

Le point B situé à l'intersection de cette tangente avec la verticale correspondant au temps $t = \Delta t$ est la mesure de l'élévation de température correspondant au temps de chauffage pendant le temps Δt .

Autrement dit, la mesure de l'angle AOB est une mesure corrigée de l'élévation de température pendant le temps Δt .

Les valeurs obtenues par cette méthode nous ont donné la courbe III de la fig. 3, courbe qui se rapproche sensiblement de la courbe théorique. Les valeurs obtenues sont en effet 5 % en dessous des valeurs théoriques. L'écart restant peut être dû essentiellement à une réparation imparfaite des thermocouples à la surface du bloc de mesure. Sur une série de mesures faites avec la même puissance d'étalonnage, l'écart maximum observé a été reconnu égal à $\pm 3\%$.

Mesure de sources de cobalt 60.

La fig. 5 donne une image de l'enregistrement effectué avec une source de cobalt 60 d'environ 2 600 curies.

L'allure de la courbe démarre beaucoup plus nettement que dans le cas de l'effet Joule, et ceci s'explique facilement, une bonne partie de l'énergie étant dissipée directement au sein même de la masse de cuivre, tandis que la mesure de l'échauffement par effet Joule est fonction de la vitesse avec laquelle la chaleur est transmise au bloc de cuivre par convection et par rayonnement.

La fig. 6 donne quelques exemples de sources mesurées d'une part avec une chambre à puits, d'autre part avec le calorimètre. La différence que l'on observe entre les résultats calorimétriques toujours supérieurs, et ceux obtenus par la chambre d'ionisation, peut être due à l'autoabsorption par la source.

II. CALORIMETRE A AUTOABSORPTION.

A la suite des résultats acquis avec le calorimètre Υ à absorption totale décrit au paragraphe précédent, il est apparu utile de pouvoir faire des mesures de recoupements entre trois séries de mesures :

- calorimètre à absorption totale,
- mesures de l'énergie sortante par chambre d'ionisation,
- mesure de l'énergie absorbée.

Cette dernière mesure posait un problème nouveau. Il fallait arriver à mesurer la chaleur dégagée par une source de rayonnement Υ sans absorber plus de rayonnement que celui déjà absorbé dans la source, ou en pouvant effectuer une correction de température convenable.

Nous avons pensé qu'une telle mesure pouvait être réalisée dans un appareil où l'on mesurerait l'élévation de température d'un volume d'air emprisonné entre des parois constituées d'un matériau de faible densité et isotherme (polystyrène expansé). Le dessin de l'appareil est reproduit figure 7.

Description de l'appareil.

Il est constitué par une caisse en bois formant un cube de 530 mm d'arête. Les parois internes sont tapissées de plaques de polystyrène expansé de 25 mm d'épaisseur. L'enceinte du calorimètre ainsi construit offre un volume d'air de 89,5 litres.

Huit thermocouples, disposés par groupe de deux, sur les quatre arêtes verticales, et pénétrant de 5 cm dans l'enceinte du calorimètre, permettent de mesurer l'élévation de température, à partir d'un pont potentiométrique enregistreur. Ces thermocouples sont montés en série à l'aide de bornes de jonction fixées sur une plaquette en laiton positionnée dans une boîte en polystyrène expansé, fixée sur une des faces du calorimètre. Il nous est donc permis d'estimer que la température de référence, au niveau des soudures froides, est constante au cours d'une manipulation, d'autant plus que celle-ci est de très courte durée, environ 30 secondes.

Un ventilateur assure la répartition homogène de l'air. Pour obtenir cette homogénéisation, sans provoquer d'échauffement parasite, il a fallu combiner la vitesse de rotation du moteur et la taille des pales de l'hélice.

Le système de guidage et d'introduction de la source est composé de deux plaques de polystyrène expansé, faisant office de bouchons ; celle du bas, lors du zéro, celle du haut, lors de la mesure.

Ces mêmes plaques comportent un système de rainures, coulissant dans deux guides verticaux. Le logement de la source est un panier fait en fil d'acier de 0,5 mm de diamètre et placé à mi-distance de ces deux bouchons. Le déplacement d'un bouchon à l'autre pour passer de la position de référence à la position de mesure doit être effectué le plus rapidement possible.

Les difficultés auxquelles nous nous sommes heurtés sont les suivantes :

- d'abord il a fallu prouver que l'influence d'un champ Υ important était négligeable sur le résultat des mesures, c'est-à-dire sur les valeurs données par les thermocouples. Dans ce but, une manipulation spéciale a été montée, qui est reproduite figure 8, dans laquelle une source de rayonnement Υ intense (2 900 curies) a été introduite dans ce calorimètre, mais en l'isolant thermiquement, à la fois des thermocouples et de la grande masse de l'air ambiant. La température de l'air ambiant ne varie pas dans ces conditions.
- Il a été nécessaire de maintenir la source avec un support très léger afin de diminuer l'absorption parasite. Le support, qui varie de forme selon la géométrie de la source mesurée, est

réalisé en fil d'acier dont le poids total n'excède pas 2 grammes. Sa présence n'introduit pas une erreur supérieure à 1 %.

- Enfin, il fallait tenir compte du fait que la source introduite dans le calorimètre était à une température déterminée et qu'il fallait autant que possible éviter que la température de la source varie durant la mesure.

Cette condition paraissait difficilement compatible avec la nécessité d'homogénéiser la température de l'air à l'aide d'un petit ventilateur, le principe de la mesure étant naturellement de mesurer l'échauffement de l'air pendant un temps très court.

Afin d'éviter un refroidissement de la source dû au brassage de l'air, une protection contre l'effet du ventilateur a été réalisée à l'aide d'un petit écran métallique très léger.

Etalonnage par effet Joule.

Les mesures effectuées dans cet appareil se caractérisent par leur extrême rapidité. Le déroulement du papier sur le millivoltmètre enregistreur est fixé à 1 s/2,5 mm (fig. 9). Lorsque la ligne de base est parfaitement horizontale, on effectue le mouvement de la source vers l'intérieur du calorimètre. L'élévation de température est presque immédiate. La courbe de montée de température n'est pas une droite. Elle présente un point d'inflexion plus ou moins allongé.

En raison de la courte durée de la mesure, l'homogénéisation de la température est très difficile à assurer parfaitement et d'autre part le brassage de l'air favorise les pertes thermiques vers l'extérieur. On arrive cependant à une reproductibilité correcte des mesures en prenant la tangente à la courbe d'enregistrement au point d'inflexion de celle-ci. Généralement, on effectue trois mesures successives avec la même source et on prend la moyenne des trois mesures effectuées.

La figure 10 reproduit, pour des conditions de manipulation identiques, une courbe d'étalonnage effectuée avec une source cylindrique en acier inoxydable (ϕ 20 mm, L = 37 mm) reproduisant une source de cobalthérapie.

La courbe I reproduit les valeurs d'élévation de température Δt obtenues après 30 s de chauffage. Ce Δt est mesuré de la manière suivante : la montée en température prise en considération est celle figurée par une droite tangente au point d'inflexion comme indiqué figure 9.

Si l'on trace, parallèlement à cette valeur expérimentale, la valeur théorique d'après la formule (1) :

$$\Delta \theta = \frac{PW}{CM}$$

on peut tracer la courbe II.

Les rapports de valeurs de la courbe I par rapport aux valeurs de la courbe II donnent le rendement thermique du calorimètre.

On voit que celui-ci, s'il est relativement correct en dessous de 4 W (> à 70 %) fai-

blit assez fortement par la suite. A ce stade, les difficultés principales résident dans les variations de pression, de température et de degré hygrométrique de l'air entre la mesure d'étalonnage et la mesure de la source.

Afin d'éviter des corrections multiples, on a jugé préférable d'associer à chaque mesure de source radioactive une mesure par une source étalon (chauffée par effet Joule) de même forme géométrique, effectuée elle aussi 3 fois. Les écarts demeurent importants d'une mesure à l'autre et varient beaucoup d'une source à l'autre, comme on peut le voir dans le tableau récapitulatif figure 6.

III. COMPARAISON DES TROIS SERIES DE MESURES.

La figure 6 compare les valeurs obtenues par la méthode précédemment décrite avec les écarts observés entre la mesure calorimètre Υ et la mesure chambre d'ionisation.

On s'aperçoit que la corrélation des trois séries de mesures se recoupe d'une manière convenable, aux erreurs de mesure près.

Manuscrit reçu le 29 février 1968

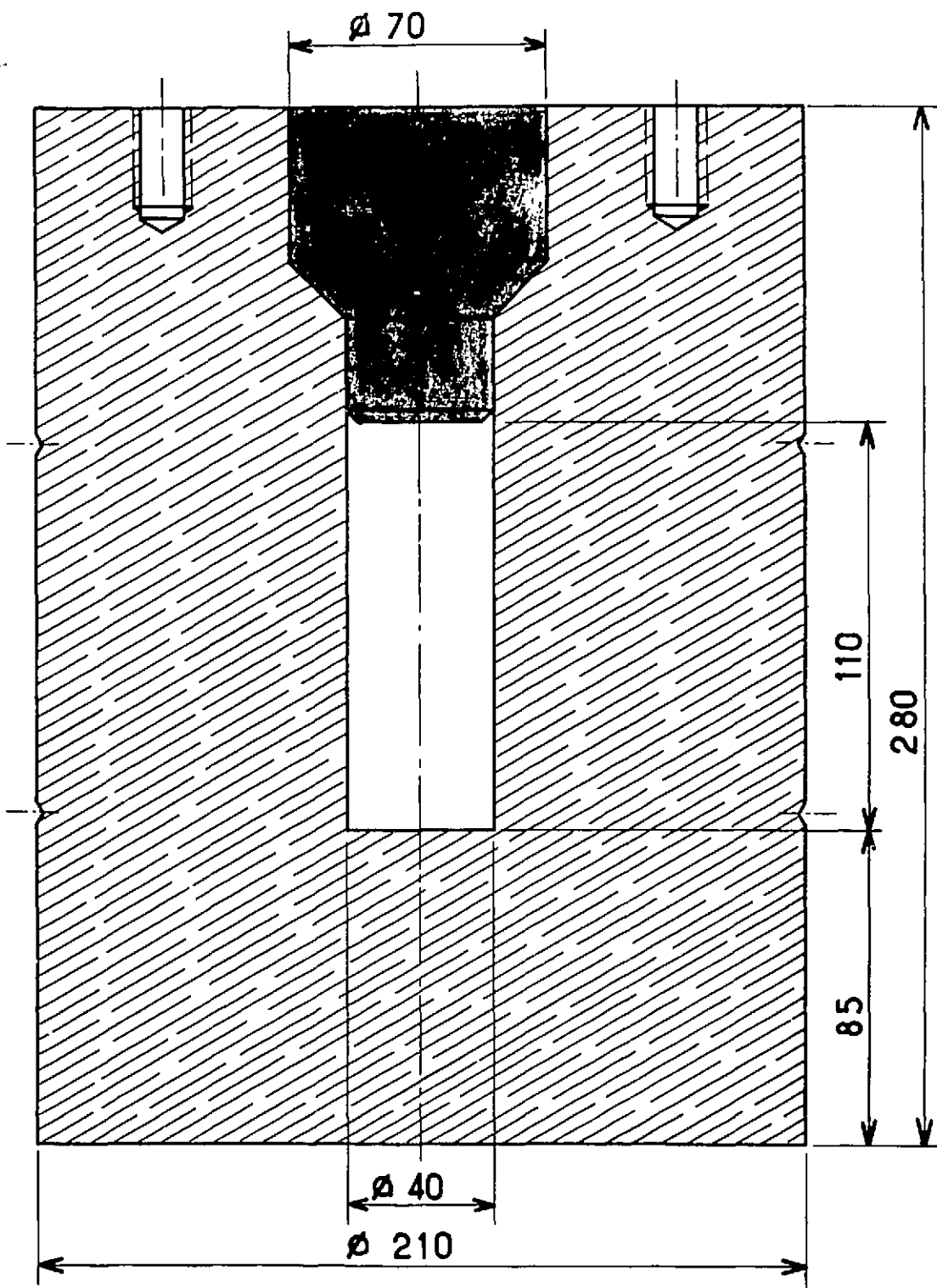


Fig.-1- BLOC DE CUIVRE
CALORIMETRE 8

Echelle: $1/2$

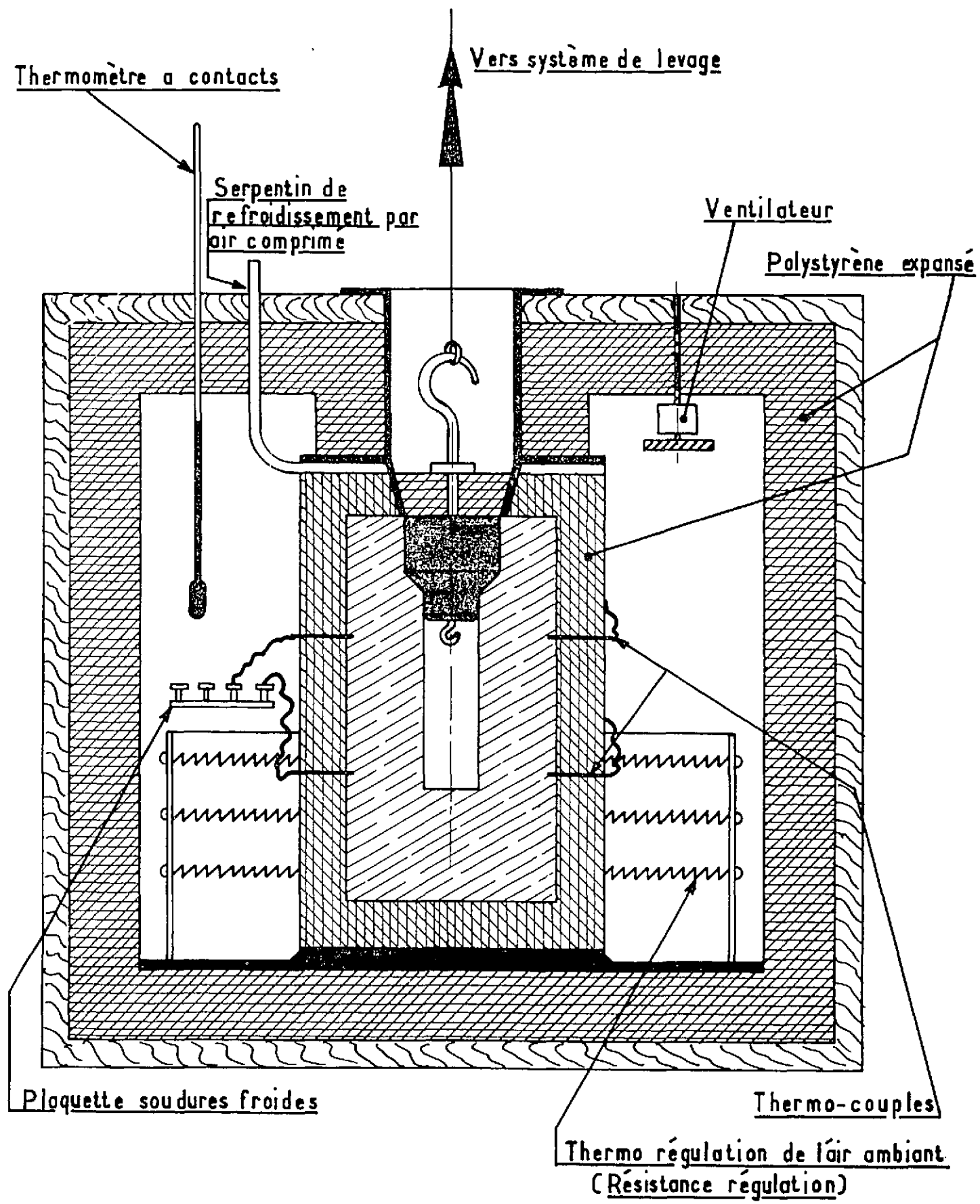


Fig. 2. CALORIMETRE γ

Echelle: 1/4

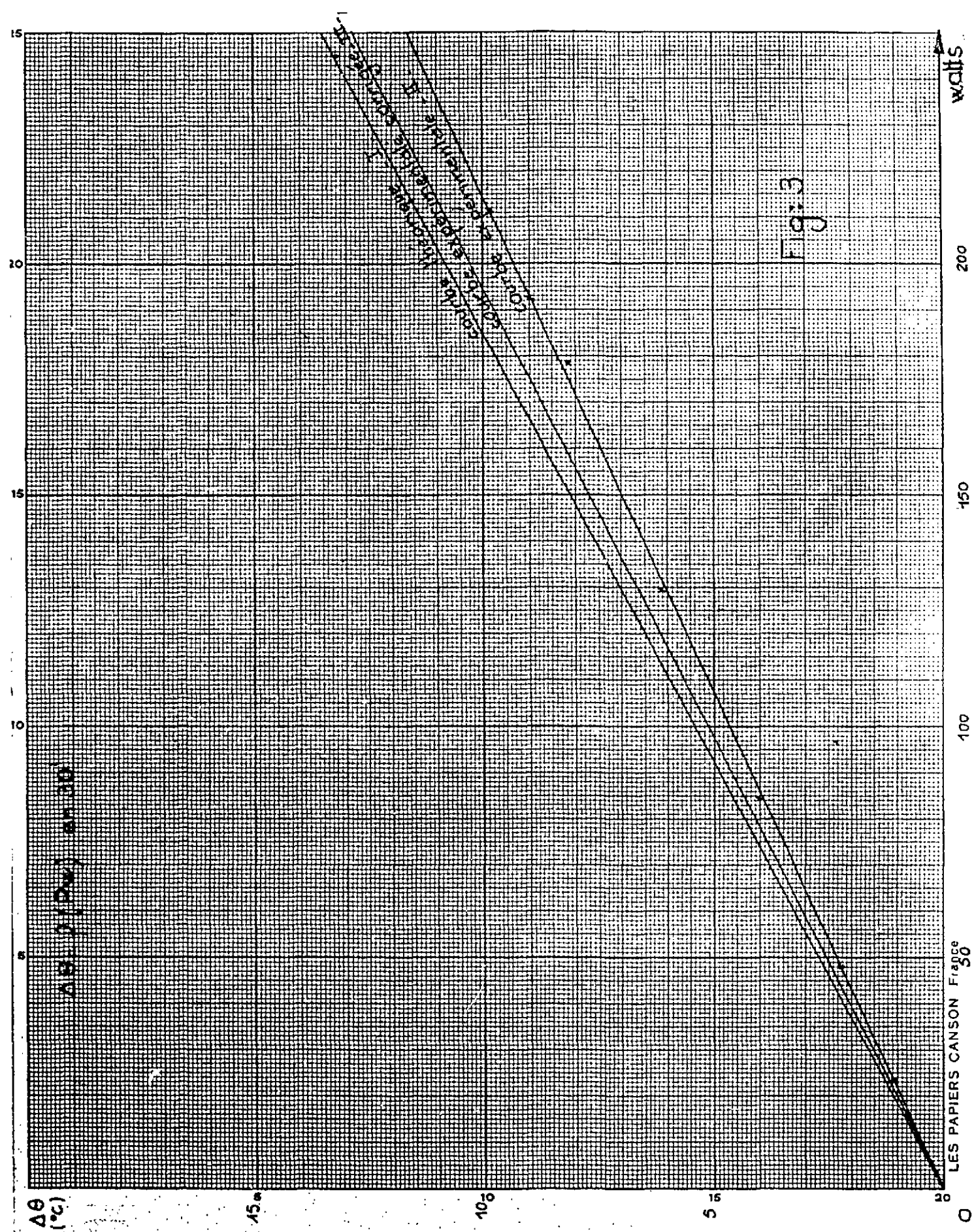


Fig. 3

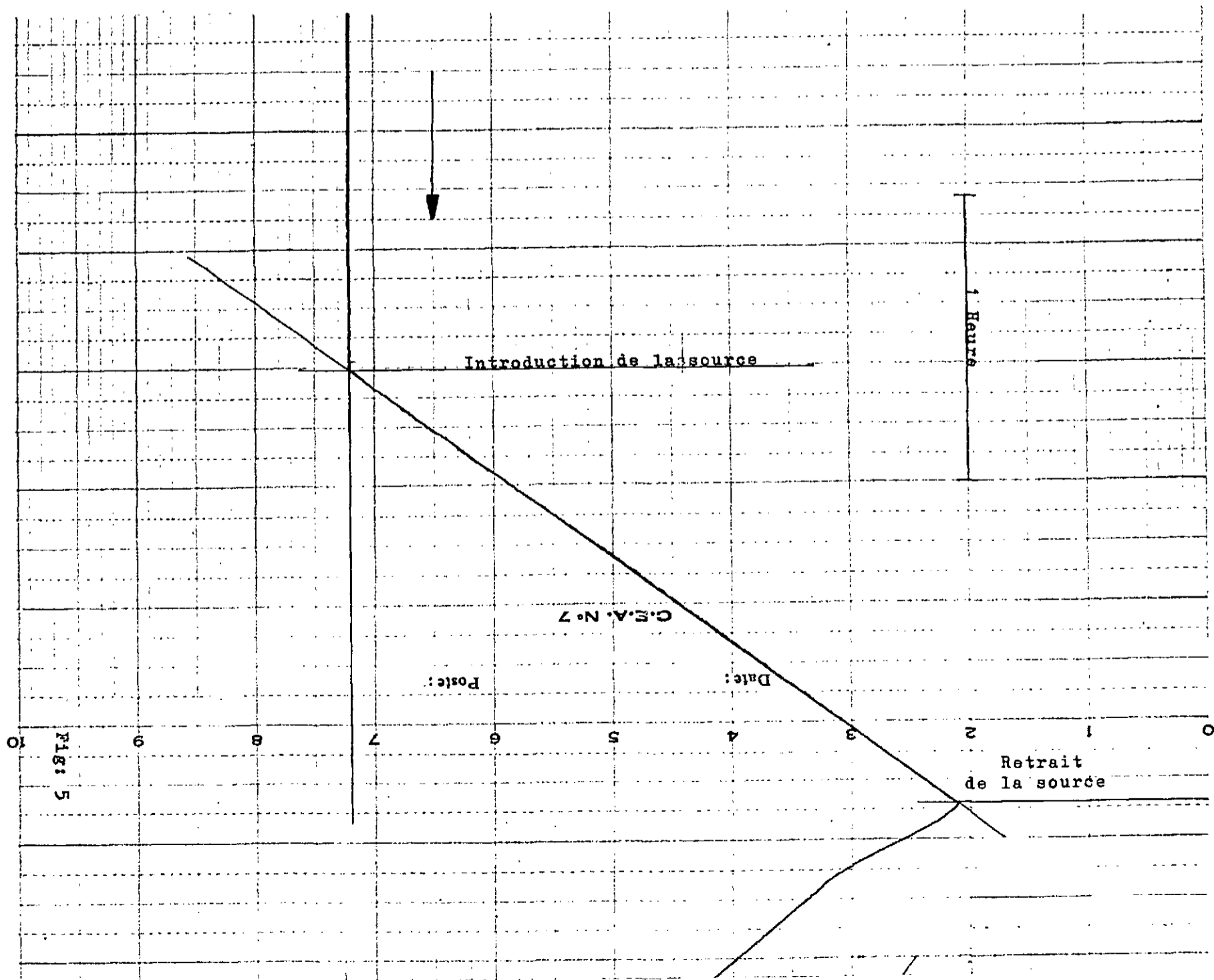
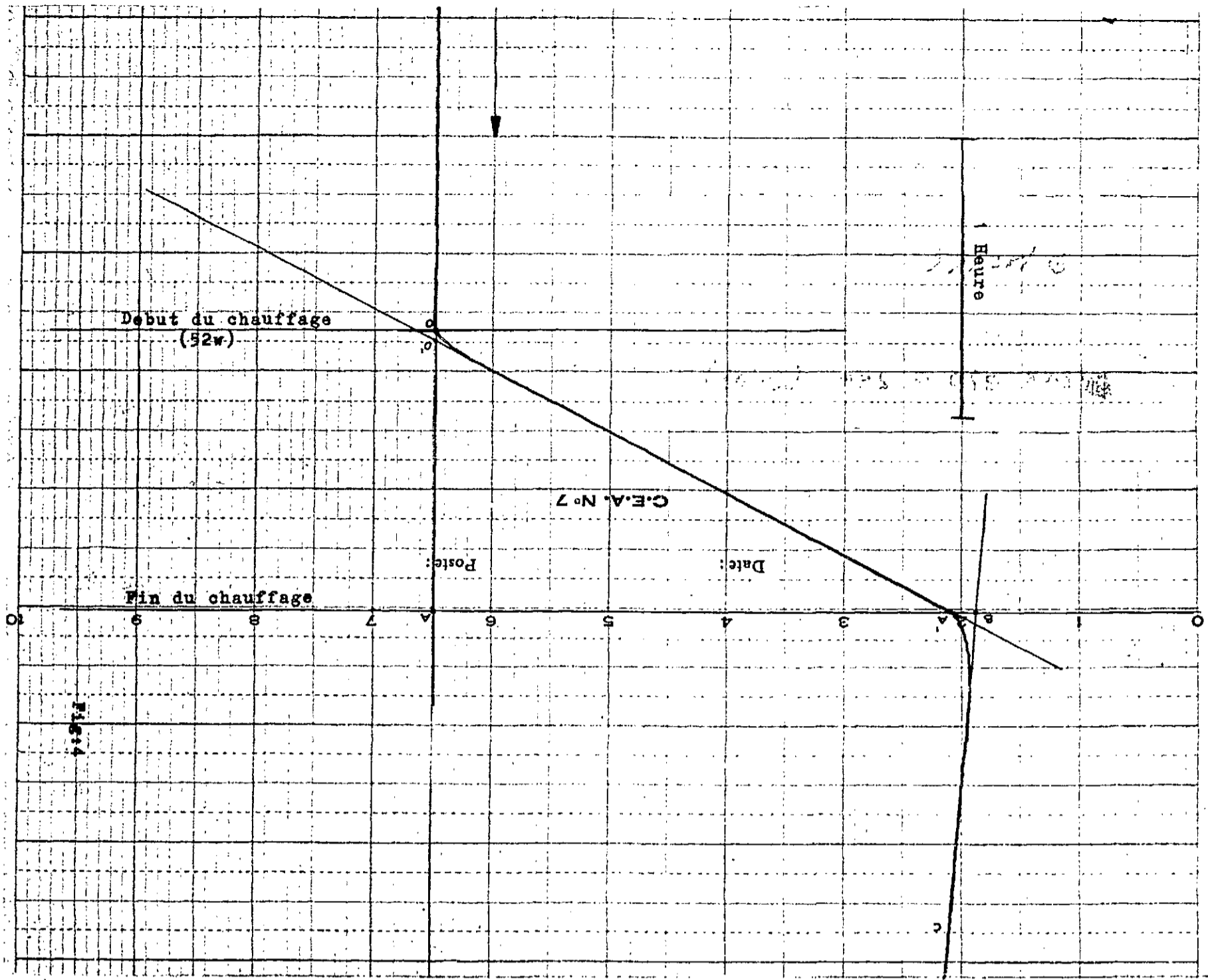


Figure 6 - Sources de téléthérapie (Ø 20).

Source	Chambre d'ionisation à puits (watts)	Calorimétrie γ (watts)	Calorimétrie à auto-absorption (watts)	Cal. γ - C.I.
A 51	15,32 \pm 0,77	+ 0,17 18,83 - 0,04	+ 0,19 3,45 - 0,21	3,51
A 49	8,82 \pm 0,44	+ 0,24 10,86 - 0,24	+ 0,14 2,85 - 0,16	2,04
2 059	24,18 \pm 1,21	+ 0,41 27,26 - 0,55	+ 0,38 3,80 - 0,41	3,08
2 061	20,30 \pm 1,02	+ 0,45 22,72 - 0,45	+ 0,02 3,75 - 0,02	2,42
2 062	20,68 \pm 1,03	+ 0,17 24,12 - 0,19	+ 0,33 3 - 0,33	3,44

Sources industrielles (plaquettes)

P 1	12,75	+ 0,46 14,72 - 0,26	+ 0,09 2,82 - 0,12	1,97
P 2	24,85	+ 0,09 29,45 - 0,09	+ 0,07 5,45 - 0,14	4,60

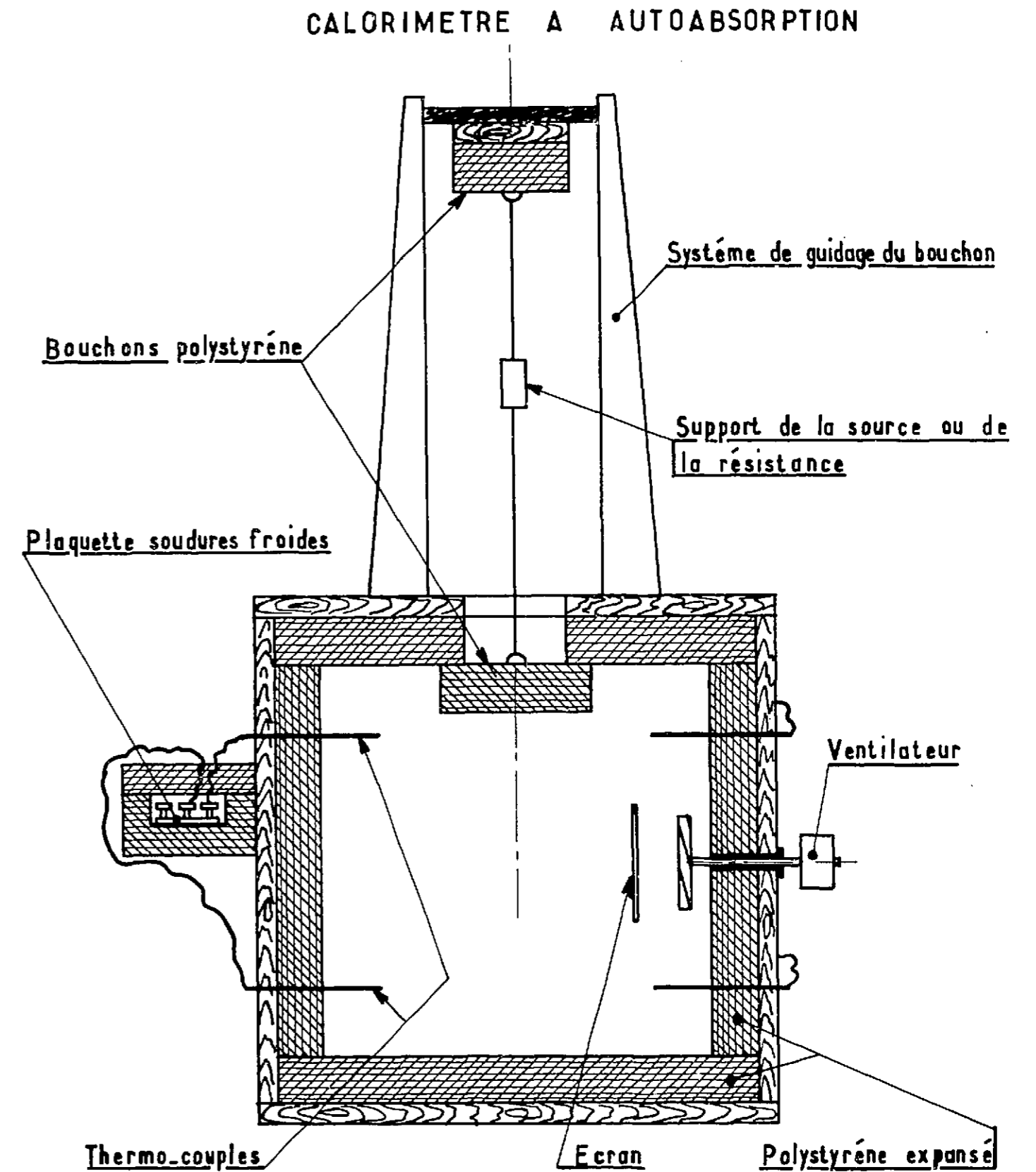


Fig.-7-

Echelle: 1/6

CALORIMETRE A AUTOABSORPTION
(Influence du champ γ)

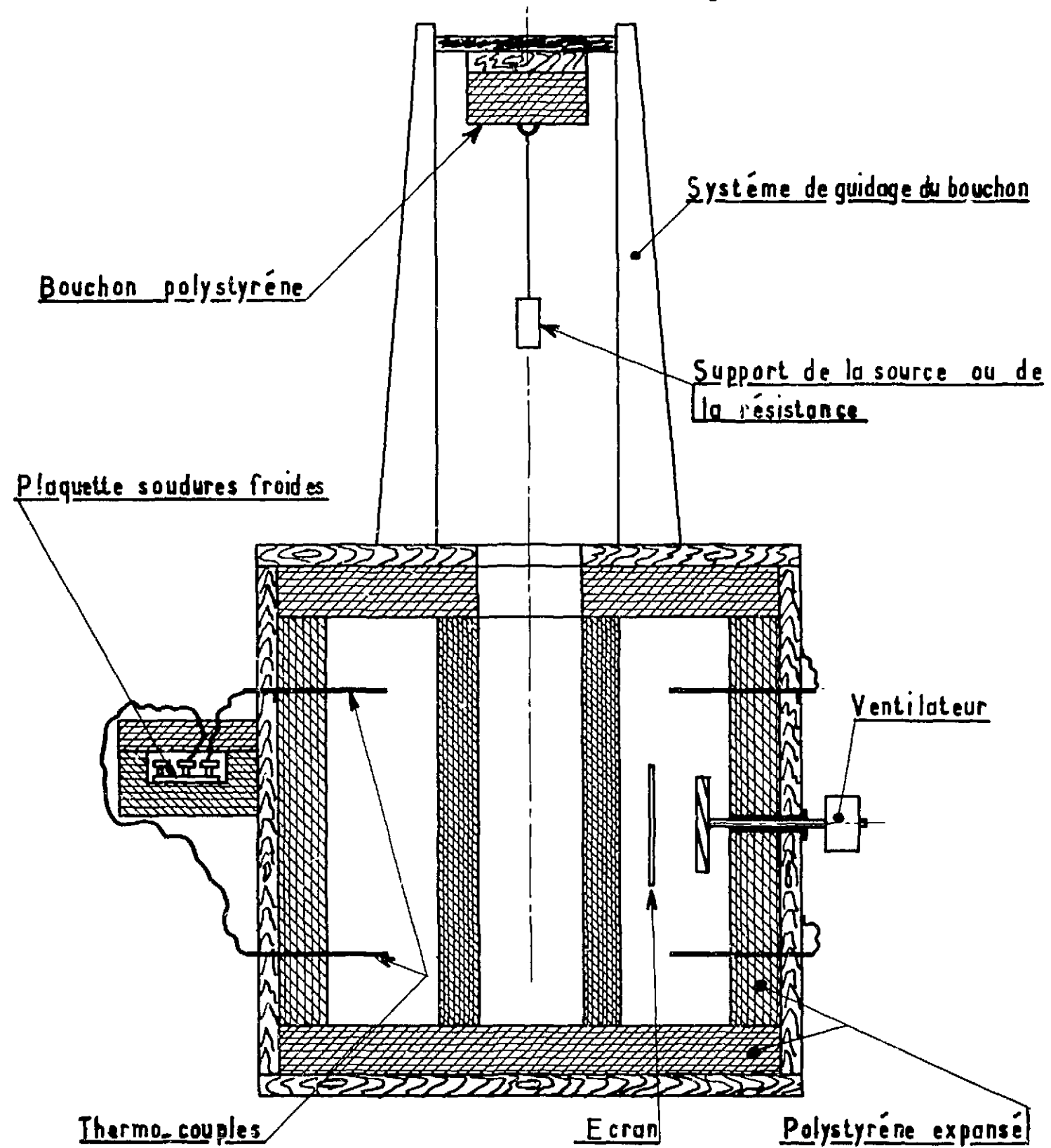


Fig..8.

Echelle : 1/6

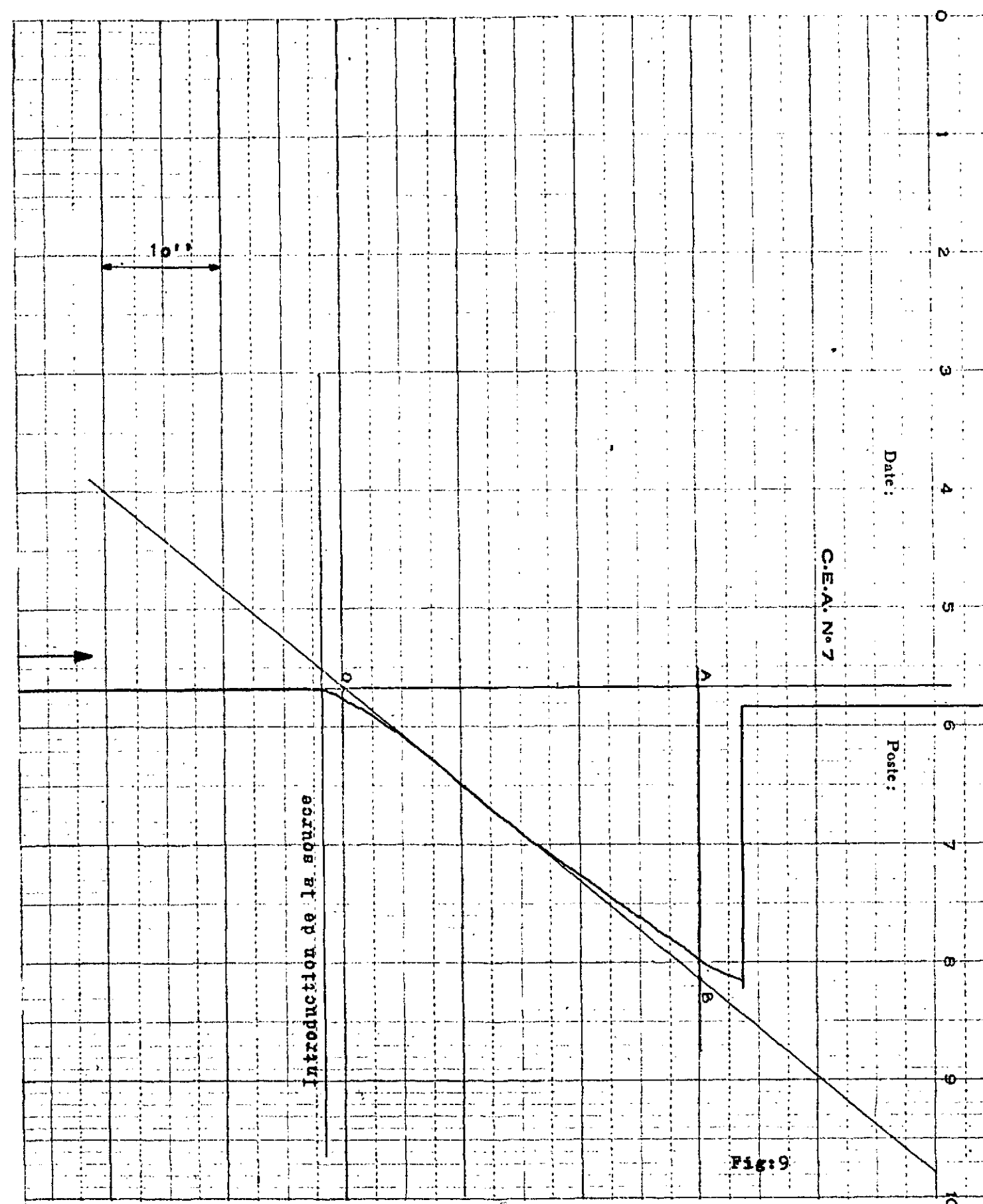
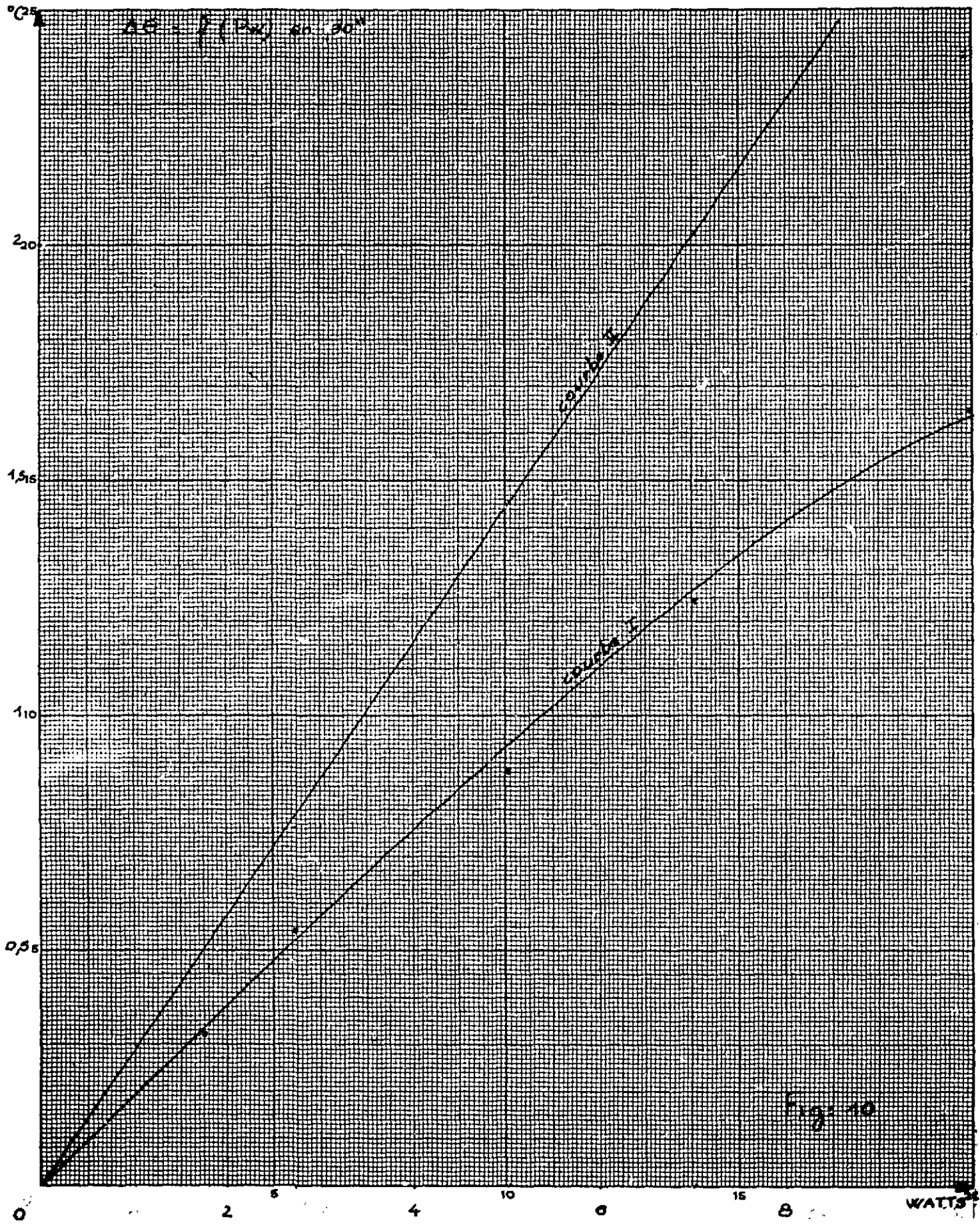


Fig:9

C.E.A. N°7

Date:

Poste:



FIN