

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 537 630**

51 Int. Cl.:

**G01T 1/178** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **07.10.2011 E 11767996 (9)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **25.02.2015 EP 2625548**

54 Título: **Sistema in situ de medición directa de una radiación alfa y procedimiento asociado para la cuantificación de la actividad de radionucleidos emisores alfa en disolución**

30 Prioridad:

**07.10.2010 FR 1058151**

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:

**10.06.2015**

73 Titular/es:

**COMMISSARIAT À L'ÉNERGIE ATOMIQUE ET  
AUX ÉNERGIES ALTERNATIVES (100.0%)  
25, Rue Leblanc, Bâtiment "Le Ponant D"  
75015 Paris, FR**

72 Inventor/es:

**SAUREL, NICOLAS**

74 Agente/Representante:

**LINAGE GONZÁLEZ, Rafael**

**ES 2 537 630 T3**

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín europeo de patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre concesión de Patentes Europeas).

**DESCRIPCIÓN**

Sistema *in situ* de medición directa de una radiación alfa y procedimiento asociado para la cuantificación de la actividad de radionucleidos emisores alfa en disolución

5 **Campo técnico**

La invención se refiere a la cuantificación *in situ* de la actividad de los radionucleidos emisores alfa presentes en un efluente mediante un sistema de medición de la radiación alfa no destructiva y su procedimiento de medición asociado.

10 **Estado de la técnica anterior**

15 Se hace referencia en el presente documento a la cuantificación de la actividad de los elementos radiactivos emisores alfa contenidos en determinados efluentes mediante la medición de la radiación alfa liberada por estos efluentes. Esta cuantificación es necesaria para realizar el seguimiento de materiales (aspecto de seguridad) y para efectuar el tratamiento del efluente (por ejemplo, para saber si el efluente puede transportarse o no hacia un centro de reprocesamiento, qué sector de reprocesamiento es adecuado,...).

20 Se precisa que la medición de la radiación alfa tiene un decidido interés, con respecto a la medición de la radiación gamma, al tener un límite de detección bastante más bajo y al prescindir de correcciones de atenuación complejas.

25 Por otra parte, se recuerda que un efluente designa cualquier líquido de desecho que transporta una carga contaminante (disuelta o en forma de partículas) perjudicial para el medio ambiente. Los efluentes agrupan, por ejemplo, el conjunto de las aguas residuales, tratadas o no, provenientes de una planta de tratamiento de aguas (por ejemplo, aguas negras o desechos industriales). Se recuerda que los órdenes de magnitud buscados para tales cuantificaciones varían de algunas centenas de Bq/m<sup>3</sup> a 1.10<sup>5</sup> Bq/m<sup>3</sup> en los radionucleidos U, Pu, Am.

30 Actualmente, la cuantificación de la actividad alfa de los efluentes se realiza en varias etapas: tomar un volumen de muestra de efluente, enviar esta muestra a un laboratorio de análisis y, una vez que llega al laboratorio, tomar una parte del volumen de muestra con el fin de analizarlo. El análisis se realiza efectuando una deposición sobre cubeta del volumen de muestra. Se recuerda que la deposición sobre cubeta consiste en evaporar un líquido mediante calentamiento. Se miden los residuos depositados sobre la cubeta al final de la manipulación y se cuantifica la actividad alfa de los residuos, usando por ejemplo un detector de tipo contador de rejilla o un detector de semiconductor de tipo silicio PIPS (para "Passivated Implanted Planar Silicon" en inglés). Este procedimiento implica generalmente el uso de un indicador radiactivo, lo que implica un abastecimiento de materiales nucleares de referencia y una generación de residuos nucleares complementarios.

40 El inconveniente de este modo operativo es que requiere una toma de muestras del efluente. Por tanto, el procedimiento de medición es destructivo.

45 Además, este modo operativo requiere la intervención de varios operarios para la toma de la muestra, su transporte y su análisis. También se conoce vigilar la radiactividad de las aguas arrojadas al medio ambiente por medio de un detector calibrado previamente basándose en un código Monte Carlo. Esta técnica se describe en Vojtila P, "Calibration of monitors used for surveillance of radioactivity in effluent water from CERN's accelerator installations", Applied Radiation and Isotopes 55 (2001), páginas 81-88.

50 El inventor se ha fijado, por tanto, como objetivo diseñar un sistema y un procedimiento de medición que permitan cuantificar la actividad alfa de un efluente de manera no destructiva e *in situ*, en disolución.

**Descripción de la invención**

Este objetivo se logra gracias a un sistema de medición nuclear *in situ* de la radiación alfa de un efluente, que comprende:

- 55 – M detectores de semiconductor de diamante de tipo CVD, es decir obtenido mediante deposición química en fase de vapor ("Chemical Vapor Deposition" en inglés), o de silicio recubierto por una capa de diamante y vuelto opaco a la luz visible (es decir, para una longitud de onda situada entre 400 y 800 nm), denominados detectores de radiación alfa, destinados a sumergirse en el efluente y adecuados para medir una radiación alfa emitida por dicho efluente, siendo M un número entero superior o igual a 1;
- 60 – P canales de medición conectados con los M detectores de radiación alfa, siendo P un número entero, superior o igual a 1 e inferior o igual a M, siendo cada uno de los P canales de medición adecuados para proporcionar un valor o una suma de los valores de actividad alfa procedente(s) del o de los detectores de radiación alfa con los que están conectados;

comprendiendo además el sistema, si  $P$  es superior a 1, un medio para sumar los resultados procedentes de los  $P$  canales de medición,

5 y en el que los  $M$  detectores de radiación alfa se calibran individualmente mediante un código de transporte de partículas  $\alpha$  basado en el método de Monte-Carlo, calibrándose los detectores de radiación alfa conectados con un mismo canal de medición de la misma manera; comprendiendo el sistema de medición según la invención además un detector de semiconductor monocristalino, denominado detector de espectrometría, destinado a sumergirse en el efluente y que permite identificar y cuantificar la proporción de los elementos emisores de actividad alfa presentes en el efluente.

10 Los detectores de semiconductor de diamante de tipo CVD o de silicio recubierto por una capa de diamante son respectivamente detectores de diamante obtenidos mediante deposición química en fase de vapor, o detectores de silicio de tipo SOI (para "Silicon On Insulator") mono o policristalinos sobre los que se deposita una capa de diamante obtenida mediante deposición química en fase de vapor. En ningún caso puede tratarse de detectores no selectivos con respecto a la radiación alfa. Por ejemplo, un detector de radiación gamma de tipo HPGe (para "Hyper Pur Germanium" ("germanio hiperpuro")) no sería conveniente.

15 El principio de detección de una partícula  $\alpha$  es la formación, en un detector de semiconductor, de pares electrón-hueco tras el impacto de la partícula  $\alpha$  sobre la superficie del detector. El número de pares electrón-hueco depende de la energía de la partícula  $\alpha$ , lo que permite la obtención de un espectro de energía. Los detectores SOI (para "Silicon On Insulated" en inglés) y los detectores CVD (para "Chemical Vapor Deposition" en inglés) miden la energía residual depositada por la partícula  $\alpha$ .

20 El medio para sumar los resultados procedentes de los  $P$  canales de medición puede ser, por ejemplo, una escala de recuento clásica de análisis multicanal.

25 Los  $M$  detectores de radiación alfa se calibran individualmente mediante un código de cálculo de transporte de partículas  $\alpha$  basado en el método de Monte-Carlo, calibrándose los detectores de radiación alfa conectados con un mismo canal de medición de la misma manera. El método Monte-Carlo es un método estadístico de cálculo que permite, en este caso, determinar numéricamente los coeficientes de calibración de los detectores de radiación alfa.

30 Ventajosamente,  $M$  es superior o igual a 2. El sistema de medición comprende entonces al menos dos detectores de semiconductor de radiación alfa.

35 Ventajosamente,  $P$  es igual a  $M$ . Se obtienen entonces tantos canales de medición como detectores de radiación alfa: cada uno de los detectores de radiación alfa se calibra, por tanto, individualmente. Por tanto, puede obtenerse así, por ejemplo, el gradiente de la actividad alfa del efluente y un calibrado específico por fases de efluente teniendo en cuenta las características fisicoquímicas de cada una de las del efluente.

40 Según una variante particular de la invención, cuando el efluente comprende  $Q$  fases diferentes, siendo  $Q$  un número entero superior o igual a 2, al menos dos detectores de radiación alfa están dispuestos en fases diferentes del efluente. Las fases son diferentes en cuanto a la naturaleza fisicoquímica, la densidad, la salinidad... Ventajosamente, el sistema de medición comprende al menos un detector de radiación alfa por fase de efluente.

45 Preferiblemente, los  $M$  detectores de radiación alfa son idénticos. Esto permite poder comparar directamente los resultados obtenidos por estos  $M$  detectores de radiación alfa sin tener que realizar cálculos complementarios, por ejemplo para detectar la presencia de un gradiente de actividad.

50 Ventajosamente, el detector de semiconductor monocristalino se elige de un detector de semiconductor CVD o SOI de diamante. Para identificar y cuantificar la proporción de los elementos emisores de actividad alfa, se coloca un dispositivo específico delante del detector. Por ejemplo, el detector dedicado a la espectrometría puede equiparse con un canal haciendo pasar una lámina de efluente de grosor micrométrico por delante de este último. Gracias a las informaciones facilitadas por este detector dedicado a la espectrometría, puede conocerse entonces la actividad alfa de cada elemento emisor alfa contenido en el efluente.

55 Según una segunda variante, de los  $M$  detectores de radiación alfa que comprende el sistema de medición, un detector de radiación alfa es monocristalino, está conectado con un primer canal de medición, elegido de los  $P$  canales de medición, que proporciona un valor de la actividad alfa y está conectado con un segundo canal de medición, diferente de los  $P$  canales de medición, que proporciona la espectrometría del efluente. En este caso particular, un mismo detector sirve a la vez como detector de radiación alfa y como detector de espectrometría. Para tener estas dos funciones, el detector será forzosamente un detector de semiconductor monocristalino o SOI de diamante.

65 Ventajosamente, el sistema de medición según la invención comprende además medios de mantenimiento que permiten mantener los  $M$  detectores de radiación alfa sumergidos y en posiciones determinadas en el efluente.

Ventajosamente, los medios de mantenimiento mantienen al menos dos detectores de radiación alfa a alturas diferentes en el efluente.

5 Ventajosamente, los medios para mantener los M detectores de radiación alfa son un árbol (por ejemplo, un eje) que comprende ramificaciones a nivel de las cuales están dispuestos los M detectores de radiación alfa. Ventajosamente, los M detectores de radiación alfa están situados en los extremos de las ramificaciones. Preferiblemente, hay M ramificaciones.

10 Preferiblemente, las ramificaciones son móviles por el árbol; la distancia entre las ramificaciones puede modificarse así y los detectores de radiación alfa pueden desplazarse así para fijarse a una altura más satisfactoria en el efluente.

15 Según una variante, el detector de espectrometría se fija a uno de los medios de mantenimiento. Si los medios de mantenimiento son un árbol con M ramificaciones, este árbol puede comprender una ramificación complementaria sobre la que se fijará el detector monocristalino de espectrometría.

20 Preferiblemente, el detector monocristalino o SOI de diamante de espectrometría se dispone en la parte superior del volumen de efluente, es decir en la parte del efluente más desprovista de partículas en suspensión.

La invención también se refiere a un procedimiento de medición nuclear *in situ* de la radiación alfa de un efluente. Este procedimiento de medición comprende las etapas que consisten en:

25 – sumergir en el efluente M detectores de semiconductor de diamante de tipo CVD o de silicio recubierto por una capa de diamante adecuados para medir la actividad alfa del efluente, siendo M un número entero superior o igual a 1, estando los M detectores de radiación alfa conectados con P canales de medición, siendo P un número entero superior o igual a 1 e inferior o igual a M, denominándose dichos M detectores de semiconductor detectores de radiación alfa;

30 – calibrar los M detectores de radiación alfa, calibrándose los detectores conectados con un mismo canal de medición de la misma manera, realizándose la calibración mediante un código de transporte de partículas  $\alpha$  basado en el método de Monte-Carlo;

35 – recoger P valores de radiación alfa con la ayuda de los P canales de medición conectados con dichos M detectores de radiación alfa, correspondiendo el valor *i*-ésimo recogido (siendo *i* = de 1 a P) o bien al valor procedente de un solo detector de radiación alfa, si el canal de medición correspondiente sólo está conectado con dicho detector de radiación alfa, o bien a la suma de los valores procedentes de los detectores de radiación alfa conectados por dicho canal de medición,

40 – si P es superior a 1, sumar los P valores de radiación alfa; el procedimiento de medición comprende además una etapa que consiste en realizar una espectrometría del efluente para determinar la identidad y la proporción de los elementos emisores alfa presentes en el efluente.

45 En el caso en el que P es igual a M, los valores recogidos corresponden a los valores obtenidos por los detectores de radiación alfa, teniendo cada detector de radiación alfa entonces su propio canal de medición: los valores recogidos por los P canales de medición no son entonces sumas de valores provenientes de varios detectores de radiación alfa, sino los valores provenientes directamente de cada detector.

Ventajosamente, los M detectores de radiación alfa están dispuestos a alturas diferentes en el efluente.

50 Según una variante, cuando el efluente comprende Q fases diferentes, siendo Q un número entero superior a 2, al menos dos detectores de radiación alfa están sumergidos en fases diferentes. Ventajosamente, se dispone al menos un detector de radiación alfa por fase diferente. Así, los M detectores están dispuestos de manera que haya al menos un detector de radiación alfa en cada fase del efluente.

55 Preferiblemente, la etapa que consiste en realizar la espectrometría del efluente se realiza sumergiendo un detector de semiconductor monocristalino o de silicio recubierto por una capa de diamante (SOI de diamante) (es decir, un detector equipado, por ejemplo, con un canal micrométrico) en el efluente y recogiendo los valores proporcionados por dicho detector de semiconductor monocristalino o de silicio recubierto por una capa de diamante (SOI de diamante).

El dispositivo y el procedimiento según la invención permiten mejorar la cuantificación de los emisores alfa presentes en los efluentes radiactivos.

65 Tal como se observó en el párrafo dedicado a la técnica anterior, la cuantificación de los emisores alfa presentes en

los efluentes se realiza actualmente mediante la toma de una muestra que se analiza mediante métodos destructivos. Estos métodos comprenden numerosos inconvenientes, concretamente la toma de muestras, el transporte de la muestra radiactiva, la necesidad de disponer de un laboratorio para aplicaciones nucleares para efectuar el análisis de la muestra, la metodología destructiva de análisis y la imposibilidad de una cuantificación de este tipo durante emisiones radiactivas parásitas (debido, por ejemplo, a la fuerte presencia de cesio) y finalmente la gestión de las muestras como residuos nucleares.

La solución para resolver los problemas de la técnica anterior consiste en proceder a sumergir directamente en el efluente que va a caracterizarse de uno a varios sensores de radiación alfa que se calibran de manera numérica, individual, específica y con cada modificación de las propiedades fisicoquímicas de la fase de efluente en la que están sumergidos, sin proceder a la retirada de dichos sensores del efluente.

La originalidad de la invención es combinar uno o varios detectores de radiación alfa de tipo CVD o SOI de diamante, colocados *in situ* en el efluente (pudiendo ajustarse el número de detectores en función del volumen de efluente que va a caracterizarse y de la heterogeneidad de este último), el acoplamiento del o de los detectores a un canal de medición que proporciona una espectrometría de los emisores alfa presentes en el efluente, la cuantificación de los emisores alfa gracias a una calibración numérica específica para cada uno de los detectores sumergidos, sin tener que usar previamente una fuente de calibración y sin retirar el sensor del efluente para calibrarlo. La calibración de los detectores resulta posible gracias a las propiedades de recorrido libre medio de las partículas alfa en el efluente y los datos accesibles en línea (salinidad, pH, tasa de llenado, número de fases presentes...) en el efluente que va a caracterizarse.

El hecho de tener una calibración específica para cada sensor permite, entre otras cosas, tener en cuenta las heterogeneidades presentes en el efluente. En efecto, al colocar de manera juiciosa los sensores en el efluente, es entonces posible obtener la cuantificación de los emisores alfa presentes en cada fase de efluente.

Las ventajas del dispositivo y del procedimiento según la invención son numerosas.

En primer lugar, permiten obtener una cuantificación de la actividad de los emisores alfa, incluso en presencia de otros radionucleidos debido a una mejor selectividad de los detectores usados, concretamente detectores CVD o SOI de diamante.

Por otra parte, se obtiene una medición en línea (cuantificación y espectrometría) de la radiación alfa del efluente.

Se obtiene también un mejor rendimiento en cuanto al límite inferior de cuantificación y a la precisión de medición.

Se obtiene un dispositivo cuyo mantenimiento es más fácil, que puede descontaminarse fácilmente y que puede transportarse fácilmente, lo que es imposible con un dispositivo de medición de radiación gamma.

Se evita el uso de fuentes de calibración que generan residuos radiactivos complementarios, puesto que la calibración es numérica. La calibración según la invención es eficaz y posible incluso en presencia de fuertes heterogeneidades en el efluente puesto que es posible de desplazar el detector a cada fase del efluente o colocar un detector en cada fase. También es evolutivo puesto que permite tener en cuenta cada modificación de las características fisicoquímicas del efluente (adición de un nuevo efluente en la cuba, neutralización de esta última,...).

El dispositivo y el procedimiento según la invención permiten cuantificar la actividad alfa de los efluentes. Pueden usarse, por ejemplo, para efectuar un seguimiento de la actividad alfa de un efluente o incluso para activar operaciones cuando el efluente presenta el contenido requerido de emisores alfa.

#### **Breve descripción de los dibujos**

La invención se comprenderá mejor y se pondrán de manifiesto otras ventajas y particularidades con la lectura de la siguiente descripción, facilitada a modo de ejemplo no limitativo, y acompañada de los dibujos adjuntos, en los que:

- la figura 1 representa la evolución de la relación señal a ruido en función de la energía para un detector de semiconductor de radiación alfa en agua,
- la figura 2 representa un ejemplo de realización del sistema de medición según la invención,
- la figura 3 representa otro ejemplo de realización del sistema de medición según la invención,
- la figura 4 representa otro ejemplo de realización del sistema de medición según la invención.

Se precisa que los elementos constitutivos de las figuras no están representados a escala.

#### **Descripción detallada de modos de realización particulares**

El sistema de medición según la invención y el procedimiento asociado permiten medir, *in situ* y de manera no destructiva, la actividad de los elementos radiactivos alfa presentes en disolución.

5 La originalidad de la invención reside en la combinación de mediciones nucleares realizadas con la ayuda de uno o de varios detectores de semiconductor de radiación alfa de tipo CVD o SOI de diamante, vueltos opacos a la luz visible (400-800 nm) y colocados directamente en la disolución que va a caracterizarse (efluente), y la determinación del coeficiente de calibración de dicho o de dichos detectores de manera numérica (mediante el código de cálculo Monte-Carlo 3D de transporte de partículas alfa). Esta combinación permite obtener una medición no destructiva en  
10 línea de la actividad alfa de los elementos radiactivos presentes en el efluente, y en particular en todas las fases del efluente (disoluciones limpias y/o en los lodos de decantación del efluente) cuando se usan varios detectores dispuestos en las diferentes fases del efluente, y así tener en cuenta la distribución de los elementos radiactivos en el efluente.

15 El sistema de medición y el procedimiento asociado permiten no solamente conocer la actividad alfa global de un efluente, sino que pueden proporcionar además la actividad alfa de los elementos radiactivos uno a uno cuando el sistema de medición comprende un detector de semiconductor monocristalino de tipo diamante CVD o SOI de diamante dedicado a la espectrometría. Un detector de semiconductor monocristalino de tipo diamante CVD o SOI de diamante de este tipo, asociado con un canal de medición que permite realizar la medición espectrométrica del  
20 efluente, permite conocer la proporción de los elementos radiactivos presentes en el efluente. Este detector de semiconductor monocristalino o SOI de diamante puede servir eventualmente a la vez para medir la actividad alfa y la espectrometría del efluente.

En la invención, la realización de la calibración del o de los detectores dedicados a la medición de la actividad alfa se  
25 obtiene mediante el código de cálculo Monte-Carlo 3D.

Sea S la señal (en impulsos por segundo) recibida por un detector determinado y A la actividad volumétrica del efluente. Se obtiene entonces la siguiente relación:

$$30 \quad A = F \times S$$

La función de transferencia F, expresada en m<sup>3</sup>, relaciona la señal con la actividad total del efluente.

35 La función de transferencia puede descomponerse como sigue:

$$F = [p(C/D) \times p(D/V_c) \times V_c]^{-1}$$

donde

- 40 – p(C/D) es la probabilidad de que el detector cuente el impulso, sabiendo que la partícula ha llegado al detector (esta probabilidad representa la eficacia intrínseca del detector);
- p(D/V<sub>c</sub>) es la probabilidad de que una partícula emitida en el volumen de efluente contenido en la cuba llegue al detector (esta probabilidad representa la eficacia geométrica del detector);
- 45 – V<sub>c</sub> es el volumen de efluente contenido en la cuba.

La probabilidad p(D/V<sub>c</sub>) es muy pequeña a causa del pequeño recorrido de las partículas alfa en un líquido.

50 Estableciendo V<sub>s</sub> como el evento "partícula α emitida en el volumen inferior o igual al recorrido de las partículas α" y V<sub>c-s</sub> como el evento "partículas α emitidas en el resto del volumen de efluente", la probabilidad p(D/V<sub>c</sub>) se convierte en:

$$55 \quad p(D/V_c) = p(D/V_s) \times p(V_s) + p(D/V_{c-s}) \times p(V_{c-s})$$

Aunque la probabilidad p(V<sub>c-s</sub>) puede ser muy grande, la probabilidad p(D/V<sub>c-s</sub>) es por definición nula.

La función de transferencia es entonces:

$$60 \quad F = [p(C/D) \times p(D/V_s) \times p(V_s) \times V_c]^{-1}$$

La probabilidad  $p(D/V_s)$  de que una partícula se detecte, sabiendo que se ha emitido en el volumen  $V_s$ , define la eficacia geométrica normalizada con respecto al volumen de fuente.

5 La probabilidad  $p(V_s)$  es igual a la razón de los volúmenes en el caso de una distribución de actividad homogénea.

El código de cálculo Monte-Carlo 3D permite evaluar las magnitudes  $p(V_s)$ ,  $p(D/V_c)$  y  $p(D/V_s)$ .

10 El rendimiento de detección (es decir,  $p(C/D) \times p(D/V_c)$ ) puede calcularse entonces mediante las fórmulas anteriores.

Las características fisicoquímicas del volumen de disolución observadas individualmente por cada detector (como la densidad, la salinidad, la naturaleza del efluente (acuoso, orgánico, ácido...)) deben tenerse en cuenta en el modelado de Monte-Carlo con el fin de obtener un rendimiento de detección lo más próximo posible a la realidad.

15 Los M detectores de radiación alfa del sistema de medición se conectan con P canales de medición, siendo P un número entero superior o igual a 1 e inferior o igual a M. Se considerará que los detectores de radiación alfa que están conectados por un mismo canal de medición presentan las mismas características fisicoquímicas: los detectores conectados con un mismo canal de medición se calibrarán, por tanto, de manera idéntica. Si cada detector de radiación alfa está conectado con su propio canal de medición, cada detector se calibrará individualmente: será entonces posible obtener una calibración diferente para cada detector, lo que permite obtener una calibración lo más aproximada posible al medio en el que se realiza la medición (fase limpia o lodo).

20 Para el cálculo de la señal S, otro dato que ha de determinarse es el número de canales en los que debe integrarse la señal. Este dato influye directamente en el valor de rendimiento de detección. Esta acción permite optimizar la relación señal a ruido.

25 Por ejemplo, la figura 1 representa la evolución de la relación señal a ruido (impulsos medidos por un detector de semiconductor de radiación alfa en función de la energía, en el caso en el que un detector de este tipo se sumerge en agua. Sabiendo que la mayor parte de las partículas  $\alpha$  tienen una energía comprendida entre 3000 y 7000 keV, la gráfica se realiza entre 0 y 7000 keV. Los cuadrados rellenos representan la relación señal/ruido, mientras que la curva de trazo continuo representa el ruido de fondo medido por el detector. Para el detector presentado en la figura 1, cuando se coloca en agua, se constata que el ruido de fondo es mínimo entre 2000 y 4800 keV: para detectar el máximo de partículas  $\alpha$  en agua, al tiempo que se obtiene una relación señal/ruido mínima, la integración es, por tanto, óptima entre 3000 y 6000 keV. Así, una regulación precisa del número de canales que deben tenerse en cuenta permite optimizar el rendimiento de detección y reducir el límite de detección.

El (o los) detector(s) de semiconductor, una vez calibrado(s), se usan(n) para medir la actividad alfa del efluente.

40 En el marco de la invención, el cálculo que permite remontarse a la actividad total  $A_T$  de un efluente viene dado por la siguiente fórmula:

$$A_T = \sum_{j=1}^M A_j$$

45 siendo M el número de detectores de radiación alfa del sistema de medición y

$$A_j = \frac{N_j}{t \times V_j \times \epsilon}$$

siendo  $N_j = N_B - N_0$

50 – siendo  $N_j$  el recuento sin ruido de fondo (en impulsos) medido por el detector j,

– siendo  $N_B$  el recuento bruto (en impulsos) medido por el detector j,

55 – siendo  $N_0$  el recuento del ruido de fondo (en impulsos) medido por el detector j,

– siendo t la duración del recuento (en segundos) por el detector j,

– siendo  $\epsilon$  el rendimiento de detección del detector j,

60 – siendo  $V_j$  el volumen observado por el detector j.

La medida  $A_j$  así obtenida proporciona un valor en Becquerel por  $m^3$ .

5 Ha de indicarse que las duraciones de recuento bruto y de recuento del ruido de fondo deben ser idénticas para que la fórmula anterior sea válida.

10 El número de detectores de radiación alfa comprendidos en el sistema de medición según la invención permite aumentar el rendimiento del sistema de medición en cuanto al límite de detección. Este número se optimizará en función de la precisión que se desea obtener en la medición, del volumen de efluente y también del número de fases diferentes identificadas que van a caracterizarse (es preferible, en este caso, tener como mínimo un detector por cada una de las fases diferentes si el volumen de efluente lo permite). Por ejemplo, cuanto mayor sea el volumen de efluente, más necesario será aumentar el número de detectores con el fin de aumentar la precisión de la medición de la actividad.

15 Por otro lado, además del aumento de la precisión de la medición y de la determinación del coeficiente de calibración que va a usarse, es ventajoso disponer los detectores de radiación alfa a alturas diferentes en el efluente con el fin de detectar la presencia de un gradiente de actividad, en el caso en el que la actividad no sea homogénea en todo el efluente, por ejemplo en el caso de una decantación. Al colocar los detectores de semiconductor alfa del dispositivo de medición a diferentes alturas en la cuba, se obtiene una buena representatividad de la distribución de la actividad alfa en la cuba. El rendimiento de detección del dispositivo de medición no se determina ya entonces en la totalidad del volumen del efluente, sino por tramo de efluente abarcado por cada detector: en lugar de suponer que la distribución de la actividad alfa en el efluente es homogénea, se supone en este caso que la distribución de la actividad alfa es homogénea radialmente y por toda la altura del tramo "observado" por cada detector de semiconductor alfa. Se supone también que la densidad y la composición química del efluente son constantes en el interior de un mismo tramo. Este corte en tramos permite, por tanto, tener en cuenta los eventuales gradientes de densidad presentes en la cuba y sobre todo poder realizar una medición en los depósitos de fondo de cuba con un rendimiento de detección específico. Entonces puede reducirse la incertidumbre sobre la actividad alfa y tener en cuenta mejor los parámetros que influyen en la determinación de la actividad alfa reduciendo los riesgos debidos a la toma de muestras.

30 La presencia de un gradiente en la cuba se detecta fácilmente por la presencia de una variación de la señal entre los detectores de radiación alfa cuando los detectores de radiación alfa son idénticos y están conectados con canales de recuento diferentes (un canal de recuento para cada detector de radiación alfa). Es por ello que es preferible usar detectores de radiación alfa idénticos.

35 Este gradiente, desde arriba hacia abajo de la cuba, puede deberse o bien a la decantación de los emisores alfa en la cuba (siendo principalmente cierto para los efluentes activos acuosos, de pH neutros), o bien a la decantación de las materias en suspensión presentes en la cuba.

40 Si se presenta el primer caso, entonces el gradiente de señal aumentará en función de la profundidad de la cuba. En el segundo caso, este mismo gradiente disminuirá. La combinación de los dos efectos equilibra el gradiente.

45 Así, un gradiente positivo entre dos tramos de efluente observados por dos detectores de radiación alfa situados a alturas diferentes se traducirá en el modelado de Monte-Carlo en un aumento de la tasa de emisión, de manera idéntica a la relación de la señal obtenida entre estos dos tramos.

Para un gradiente negativo, será la masa volumétrica aparente la que se aumentará en función de la relación de la señal entre los dos tramos.

50 Para un gradiente nulo, el modelado del tramo será un compromiso entre los dos efectos.

Además del o de los detectores de radiación alfa, el sistema de medición según la invención también puede comprender un detector encargado de determinar la espectrometría del efluente y de identificar así los elementos radiactivos emisores alfa presentes en el efluente.

55 Este detector dedicado a la espectrometría del efluente es un detector de semiconductor monocristalino, de tipo CVD o SOI de diamante. Este detector se sitúa preferiblemente en la parte superior de la cuba, es decir en la parte más limpia del efluente contenido en la cuba. Se plantea la hipótesis de que la relación isotópica entre los diferentes elementos radiactivos emisores alfa es constante en toda la cuba. El detector monocristalino o SOI de diamante debe tener además un diámetro mínimo de 1 pulgada con el fin de tener un límite de detección compatible con la actividad de la cuba (límite de detección del orden de  $100000 \text{ Bq por } m^3$  para partículas  $\alpha$  que tienen energías que van de 4 a 6 MeV).

65 Entonces puede determinarse, en una primera aproximación, para cada actividad  $A_j$  detectada por los M detectores de radiación alfa, la proporción de la actividad por elemento radiactivo emisor alfa:



## ES 2 537 630 T3

$$A_n = \%_n \times A_j$$

donde  $A_n$  es la actividad alfa del elemento radiactivo emisor alfa  $n$  y  $\%_n$  es la proporción del elemento radiactivo  $n$  en el efluente con respecto a los demás elementos radiactivos emisores alfa.

5 La proporción  $\%_n$  se determina a partir del espectro obtenido por el detector de espectrometría según la siguiente relación:

$$\%_n = N_n/N_T$$

10 siendo  $N_n$  la señal obtenida para el elemento radiactivo  $n$  (mediante las técnicas habituales de deconvolución de espectro) y siendo  $N_T$  la señal obtenida en la zona del espectro que contiene todos los elementos radiactivos emisores alfa (es decir, en el número de canales usado para la determinación de la información isotópica).

15 También puede determinarse directamente la proporción de la actividad total por elemento radiactivo emisor alfa a partir de la siguiente fórmula:

$$A_n = \%_n \times A_T$$

20 No obstante, la medición así obtenida será precisa con la condición de que no haya ningún gradiente, o uno pequeño, en la actividad del efluente.

La figura 2 representa una cuba 1 que contiene un efluente que tiene tres fases 2, 3, 4 diferentes y en la que se introduce un ejemplo de realización de un sistema de medición según la invención. En este ejemplo, el sistema de medición comprende cinco detectores 5 de radiación alfa (representados por rectángulos que contienen una cruz), mantenidos en el efluente por un medio 7 de mantenimiento que tiene la forma de un árbol, es decir un eje central y ramificaciones. En este caso, los detectores 5 de radiación alfa se conectan con cinco canales 6 de medición, uno para cada detector y los cinco canales 6 de medición se conectan con un medio sumador (no representado) (por ejemplo un analizador multicanal, una escala de recuento...). En este ejemplo, los detectores 5 de radiación alfa están dispuestos en los extremos de las ramificaciones del árbol y se mantienen así a alturas determinadas en el efluente. En particular, el efluente comprende en este caso tres fases diferentes: una fase clara situada en la parte superior de la cuba y en la que están situados tres detectores de radiación alfa, una fase turbia en la que está situado un detector de radiación alfa y una fase de lodos en la que está situado un detector de radiación alfa.

35 Los medios de mantenimiento se diseñan preferiblemente para permitir el paso de los diferentes cableados útiles para el buen funcionamiento de los detectores (alimentación de alta tensión, baja tensión, transporte de la señal...). En este ejemplo, el armazón del árbol es hueco y sirve para el paso de los diferentes cables.

40 En este caso, los detectores se insertan en los extremos de las ramificaciones de modo que solamente la parte activa de los detectores está en contacto con el efluente.

El árbol es preferiblemente estanco y resistente a los compuestos ácidos o básicos.

45 En este ejemplo de realización, los medios de mantenimiento son un árbol, pero es conveniente cualquier medio que permita mantener el o los detectores de radiación alfa en una posición determinada en la cuba. Por ejemplo, los medios de mantenimiento pueden ser un vástago helicoidal sobre el que se fijarán los detectores de radiación alfa.

Los detectores de radiación alfa están situados preferiblemente lejos de los bordes de la cuba con el fin de facilitar su calibración evitando tener que considerar los "efectos de borde".

50 Según otro ejemplo de realización del sistema de medición según la invención, un efluente activo de 3 m<sup>3</sup> está contenido en una cuba que tiene una altura de 2,3 m y un diámetro de 1,3 m. Para un contenedor de este tipo, un número de 10 detectores de radiación alfa es óptimo desde el punto de vista del coste del sistema de medición y el rendimiento de dicho sistema de medición (límite de detección).

55 Con un sistema de medición de este tipo se obtiene un promedio de un punto de medición cada 23 cm de altura de cuba. Este promedio deberá ponderarse evidentemente en función de los puntos característicos que se desea cuantificar, concretamente el detector a mayor profundidad se situará directamente en los lodos de decantación, el siguiente en la fase turbia situada por encima de los lodos, etc.

60 Un primer estudio de esta cuba, y sobre todo de su contenido, permite determinar el número de fases diferentes presentes en la cuba. El llenado y la salinidad de la cuba se siguen, por ejemplo, en línea mediante un indicador de

nivel y una medición de la salinidad.

Una vez lleno con la totalidad del efluente que va a analizarse, el nivel de la cuba determina qué detectores van a activarse, es decir qué detectores están totalmente sumergidos en el efluente, y la salinidad es un indicador de la masa volumétrica aparente que se introducirá en el modelado 3D para la realización de la calibración numérica de los detectores. El resultado de esta calibración numérica proporciona los rendimientos de detección de los diez detectores que se les aplican individualmente. En el caso de efluentes activos, no ácidos, es posible recurrir a detectores de semiconductor de tipo PIPS con la condición expresa de que la cuba o el detector sean opacos a la luz del día. En el caso contrario, o para cubas que tienen fuertes pH, hay que usar detectores de tipo SOI de diamante o CVD policristalino o monocristalino.

Se describen a continuación otros ejemplos de realización.

Según un primer ejemplo de realización, el sistema de medición comprende diez detectores de radiación alfa, de tipo SOI de diamante o de tipo CVD, dispuestos en una cuba y diez canales de medición independientes, estando cada canal de medición asociado a un detector de radiación alfa. Los diez canales de medición se conectan con un medio sumador no representado. Los detectores de radiación alfa están separados entre sí en el sentido de la altura de la cuba, de manera que pueden medirse las diferentes fases del efluente.

Según un segundo ejemplo de realización, representado en la figura 3, el sistema de medición se sumerge en una cuba 1 que comprende un efluente que tiene tres fases diferentes 2, 3, 4. El sistema de medición comprende, como en el ejemplo anterior, diez detectores 5 de radiación alfa (representados por rectángulos que comprenden una cruz), de tipo SOI de diamante o de tipo CVD. Comprende además un detector 15 monocristalino, de tipo CVD o SOI de diamante, dedicado a la espectrometría del efluente (representado por un rectángulo que comprende un círculo). Hay once canales 6 y 16 de medición independientes, uno por cada detector y los diez canales 6 de medición conectados a los detectores 5 de radiación alfa se conectan con un medio sumador no representado. El detector dedicado a la espectrometría 15 se coloca en la parte superior de la cuba 1, es decir en la parte del efluente que comprende menos materia en suspensión. Se precisa que los medios de mantenimiento no están representados en la figura 3.

Según un tercer ejemplo, representado en la figura 4, se realiza un sistema de medición adaptado para cuantificar la actividad alfa de un efluente comprendido en un contenedor de algunas centenas de  $\text{cm}^3$ . Por ejemplo, el contenedor 1 es un frasco de tipo SG500 de 8 cm de altura y de 9 cm de diámetro. El sistema de medición comprende, por ejemplo, tres detectores 5 de radiación alfa, de tipo SOI de diamante o CVD, un detector 15 CVD monocristalino dedicado a la espectrometría y dos canales de medición (un canal 6 de medición para los tres detectores 5 de radiación alfa y un canal 16 de medición para el detector dedicado a la espectrometría 15). Los detectores de radiación alfa están dispuestos a diferentes alturas en el frasco. Se precisa que los medios de mantenimiento no están representados en la figura 4.

En los tres ejemplos anteriores, la elección entre los detectores SOI de diamante y los detectores CVD para los detectores destinados a la cuantificación de la actividad alfa se realiza en función del contenedor y en función de la actividad alfa que va a cuantificarse. En efecto, si se desea cuantificar efluentes que tienen una actividad alfa inferior a  $18,6 \text{ M Bq/m}^3$ , es preferible que los detectores de semiconductor sean detectores policristalinos de tipo SOI de diamante de una superficie mínima de 1 pulgada<sup>2</sup> (es decir,  $2,54 \text{ cm}^2$ ). En este caso, el contenedor (cuba o frasco) deberá ser un contenedor opaco a la luz o bien el detector SOI deberá volverse opaco a la luz visible.

Al contrario, si se desea cuantificar efluentes que tienen una actividad alfa muy alta, es decir una actividad superior a  $18,6 \text{ M Bq/m}^3$ , los detectores de semiconductor serán preferiblemente detectores policristalinos de tipo CVD.

Una de las ventajas de la invención es que se aplica tanto a elementos radiactivos emisores alfa presentes en contenedores que contienen varios metros cúbicos o algunos centímetros cúbicos de efluentes, como a efluentes neutros, básicos o ácidos, así como a actividades alfa débiles, intensas o muy intensas.

Otra ventaja del sistema de medición según la invención y del procedimiento de medición asociado es que permiten medir la actividad alfa en cubas de efluentes a diferentes niveles de la cuba y en todas las fases presentes en la cuba (disolución limpia y lodos). Se obtiene así una medición más precisa de la actividad alfa del efluente y es posible conocer el gradiente de la actividad alfa del efluente en el interior de la cuba.

El sistema de medición y el procedimiento según la invención presentan otras numerosas ventajas con respecto a la técnica anterior.

En primer lugar, en la técnica anterior, la medición se realiza con una toma de una muestra de efluente y, además, sólo puede aprovecharse la fase limpia del efluente. Se está expuesto entonces a obtener un resultado de actividad sesgado, no representativo de la actividad real del efluente en el conjunto de la cuba. Con el sistema de medición y el procedimiento asociado según la invención, la representatividad de la medición de la actividad alfa es mucho más próxima al valor real.

5 Por otro lado, gracias al sistema de medición según la invención, puede identificarse y seguirse en línea la actividad de los elementos radiactivos emisores alfa presentes en el efluente. Además, puede tenerse en cuenta la distribución de la actividad en todos los niveles de la cuba gracias a una medición de actividad por tramos homogéneos de la cuba.

10 Por otra parte, el tiempo necesario para la obtención de una medición de actividad alfa se reduce con respecto a la técnica anterior (la medición directamente en la cuba sustituye a la toma de muestras, el transporte y el análisis de la muestra).

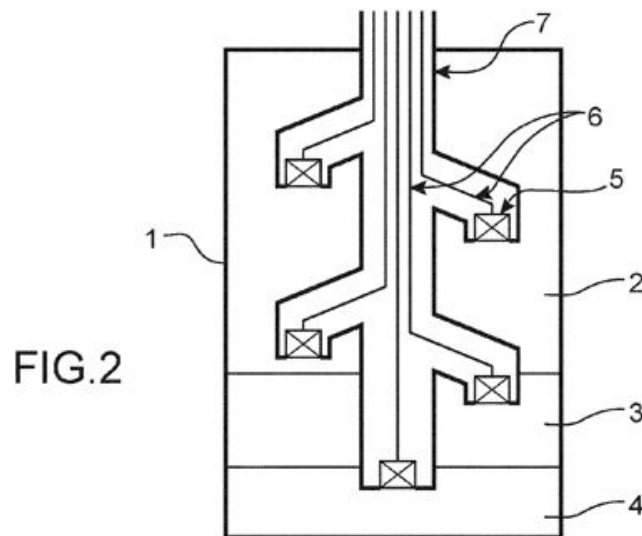
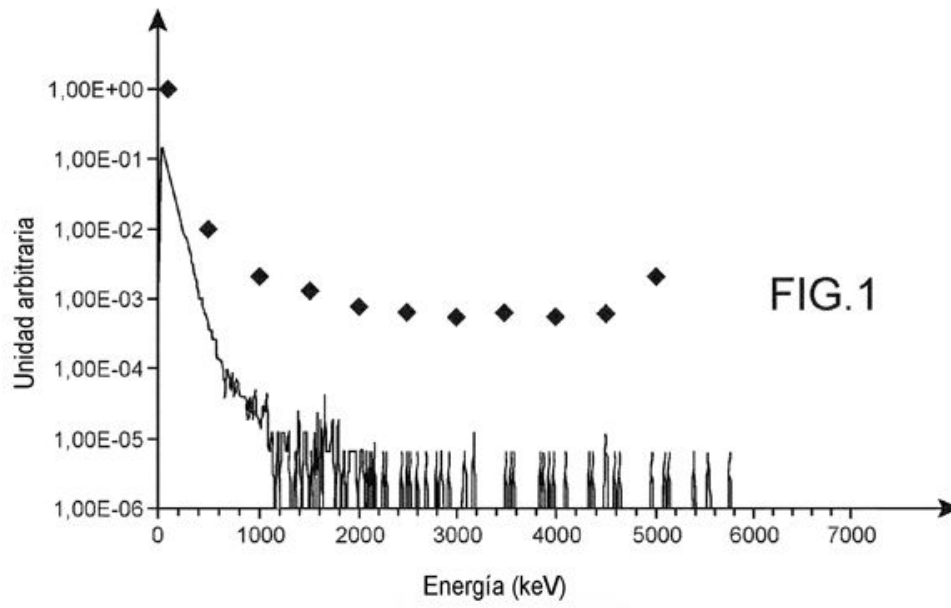
Además, se eliminan los transportes de materiales nucleares: en la técnica anterior, cada toma de muestras efectuada requiere la realización de un transporte nuclear, que después es objeto de una gestión particular como material nuclear.

15 Finalmente, con un método de medición *in situ*, es posible de realizar un seguimiento de materiales más frecuente que con un método fuera de línea.

**REIVINDICACIONES**

1. Sistema de medición nuclear *in situ* de la radiación alfa de un efluente, que comprende:
  - 5 - M detectores de semiconductor de diamante obtenidos mediante deposición química en fase de vapor o de silicio recubierto por una capa de diamante, denominados detectores (5) de radiación alfa, destinados a sumergirse en el efluente y adecuados para medir directamente una radiación alfa emitida por dicho efluente, siendo M un número entero superior o igual a 1;
  - 10 - P canales (6) de medición conectados con los M detectores de radiación alfa, siendo P un número entero, superior o igual a 1 e inferior o igual a M, siendo cada uno de los P canales de medición adecuados para proporcionar un valor o una suma de los valores de actividad alfa procedente(s) del o de los detectores (5) de radiación alfa con los que están conectados,
  - 15 comprendiendo además el sistema, si P es superior a 1, un medio para sumar los resultados procedentes de los P canales de medición
  - y en el que los M detectores (5) de radiación alfa se calibran individualmente mediante un código de transporte de partículas  $\alpha$  basado en el método de Monte-Carlo, calibrándose los detectores de radiación alfa conectados con un mismo canal de medición de la misma manera,
  - 20 estando el sistema caracterizado porque comprende además un detector de semiconductor monocristalino, denominado detector (15) de espectrometría, destinado a sumergirse en el efluente y que permite identificar y cuantificar la proporción de los elementos emisores de radiación alfa presentes en el efluente.
- 25 2. Sistema de medición nuclear de la radiación alfa de un efluente según la reivindicación 1, en el que M es superior o igual a 2.
- 30 3. Sistema de medición nuclear de la radiación alfa de un efluente según la reivindicación 2, en el que P es igual a M.
4. Sistema de medición nuclear de la radiación alfa de un efluente según una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, en el que los M detectores de radiación alfa son idénticos.
- 35 5. Sistema de medición nuclear de la radiación alfa de un efluente según la reivindicación 1, en el que el detector de semiconductor monocristalino se elige de un detector de semiconductor CVD o SOI de diamante.
- 40 6. Sistema de medición nuclear de la radiación alfa de un efluente según una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 4, en el que, de los M detectores de radiación alfa, un detector de radiación alfa es monocristalino, está conectado con un primer canal de medición, elegido de los P canales de medición, que proporciona un valor de la actividad alfa y está conectado con un segundo canal de medición, diferente de los P canales de medición, que proporciona la espectrometría del efluente.
- 45 7. Sistema de medición nuclear de la radiación alfa de un efluente según la reivindicación 1, que comprende medios de mantenimiento que permiten mantener los M detectores de radiación alfa sumergidos y en posiciones determinadas en el efluente.
- 50 8. Sistema de medición nuclear de la radiación alfa de un efluente según la reivindicación 7, en el que los medios de mantenimiento mantienen al menos dos detectores de radiación alfa a alturas diferentes en el efluente.
9. Sistema de medición nuclear de la radiación alfa de un efluente según la reivindicación 7 o la reivindicación 8, en el que los medios para mantener los M detectores de radiación alfa son un árbol que comprende ramificaciones a nivel de las cuales están dispuestos los M detectores de radiación alfa.
- 55 10. Sistema de medición nuclear de la radiación alfa de un efluente según la reivindicación 7, en el que el detector de espectrometría se fija a uno de los medios de mantenimiento.
- 60 11. Procedimiento de medición nuclear *in situ* de la radiación alfa de un efluente, que comprende las etapas que consisten en:
  - 65 - sumergir en el efluente M detectores de semiconductor de diamante obtenidos mediante deposición química en fase de vapor o de silicio recubierto por una capa de diamante adecuados para medir la actividad alfa del efluente, siendo M un número entero superior o igual a 1, estando los M detectores de radiación alfa conectados con P canales de medición, siendo P un número entero superior o igual a 1 e

- inferior o igual a M, denominándose dichos M detectores de semiconductor detectores de radiación alfa;
- calibrar los M detectores de radiación alfa, calibrándose los detectores conectados con un mismo canal de medición de la misma manera, realizándose la calibración mediante un código de transporte de partículas  $\alpha$  basado en el método de Monte-Carlo;
  - recoger P valores de radiación alfa con la ayuda de los P canales de medición conectados con dichos M detectores de radiación alfa, correspondiendo el valor i-ésimo recogido (siendo i = de 1 a P) o bien al valor procedente de un solo detector de radiación alfa, si el canal de medición correspondiente sólo está conectado con dicho detector de radiación alfa, o bien a la suma de los valores procedentes de los detectores de radiación alfa conectados por dicho canal de medición;
  - si P es superior a 1, sumar los P valores de actividad alfa;
- comprendiendo además el procedimiento una etapa que consiste en realizar una espectrometría del efluente para determinar la identidad y la proporción de los elementos emisores alfa presentes en el efluente.
12. Procedimiento de medición nuclear de la radiación de un efluente según la reivindicación 11, en el que los M detectores de radiación alfa están dispuestos a alturas diferentes en el efluente.
13. Procedimiento de medición nuclear de la radiación de un efluente según la reivindicación 11 o la reivindicación 12, en el que, cuando el efluente comprende Q fases diferentes, siendo Q un número entero superior a 2, al menos dos detectores de radiación alfa están sumergidos en fases diferentes.
14. Procedimiento de medición nuclear de la radiación de un efluente según la reivindicación 11, en el que la etapa que consiste en realizar la espectrometría del efluente se realiza sumergiendo un detector de semiconductor monocristalino o de silicio recubierto por una capa de diamante en el efluente y recogiendo los valores proporcionados por dicho detector de semiconductor monocristalino o de silicio recubierto por una capa de diamante.



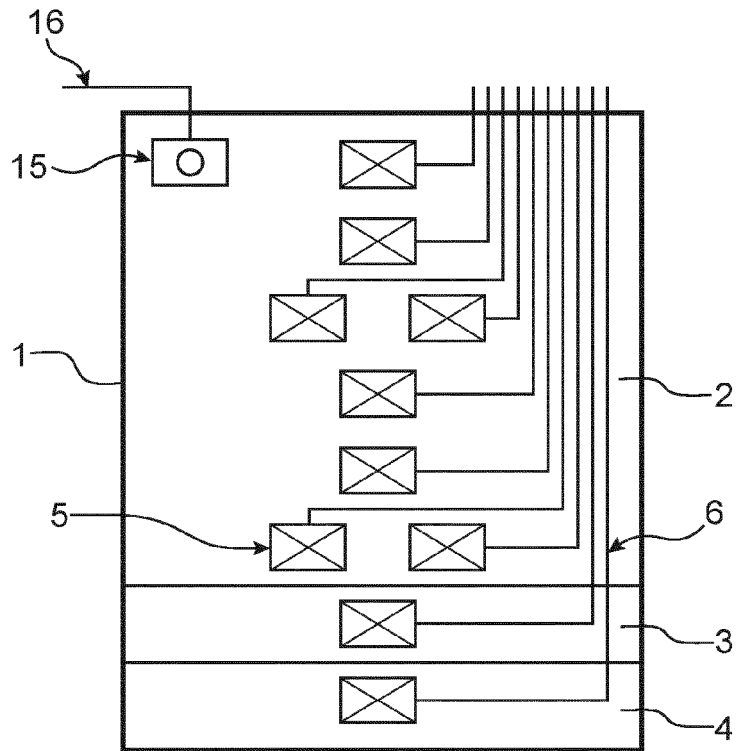


FIG. 3

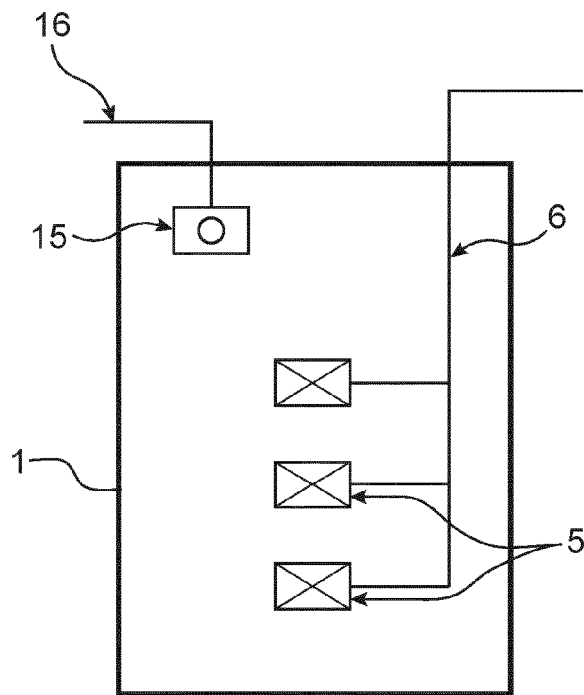


FIG. 4