



**HAL**  
open science

# Caractérisation des colis de déchets radioactifs par activation neutronique

Tangi Nicol

► **To cite this version:**

Tangi Nicol. Caractérisation des colis de déchets radioactifs par activation neutronique. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université Grenoble Alpes, 2016. Français. NNT : 2016GREAY021 . tel-01486959v2

**HAL Id: tel-01486959**

**<https://theses.hal.science/tel-01486959v2>**

Submitted on 13 Mar 2017

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

## THÈSE

Pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES**

Spécialité : **Physique appliquée**

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par

**Tangi NICOL**

Thèse dirigée par **Johann COLLOT** et **Bertrand PEROT**  
Co-encadrée par **Cédric CARASCO** et **Eric MAUERHOFER**

préparée au sein du **Laboratoire de Mesures Nucléaires du CEA Cadarache**

de l'**institut de Gestion des Déchets Radioactifs** du centre de recherche **FZJ de Jülich, Allemagne**

et de l'**École Doctorale de Physique de Grenoble**

## **Caractérisation des colis de déchets radioactifs par activation neutronique**

Thèse soutenue publiquement le « **19 Septembre 2016** », devant le jury composé de :

**M. Gérard Montarou**

Directeur de recherche CNRS au LPC de Clermont-Ferrand, Président

**M. Philippe Dessagne**

Directeur de recherche à l'IPHC Strasbourg, Rapporteur

**M. Jean Claude Angélique**

Professeur à l'ENSICAEN, Rapporteur

**M. Eric Mauerhofer**

Dr. rer. nat., FZJ, Jülich, Membre

**M. Johann Collot**

Professeur à l'UJF Grenoble, Membre

**M. Cédric Carasco**

Ingénieur-Chercheur au CEA Cadarache, Membre





## *Remerciements*

Trois ans déjà, que le temps passe vite ! Et voilà qu'une grande aventure, à la fois scientifique et humaine, s'achève pour qu'un nouveau chapitre débute ... vers l'infini et au-delà !!!

Je profite donc de ces quelques lignes pour remercier l'ensemble des personnes qui ont, de près comme de loin, contribué à cette expérience inoubliable.

Je tiens tout d'abord à remercier Gérard MONTAROU pour avoir accepté la présidence du jury lors de la soutenance de thèse, ainsi que Jean Claude ANGELIQUE et Philippe DESSAGNE pour leur lecture attentive du présent mémoire et pour l'ensemble de leurs remarques en tant que rapporteurs.

Merci à Bertrand PEROT et Cédric CARASCO du Laboratoire de Mesure Nucléaire (CEA Cadarache), Eric MAUERHOFER de l'Institut pour l'Energie et la recherche sur le Climat (IEK-6, Forschungszentrum Jülich) et Johann COLLOT de l'université Grenoble Alpes, pour leur suivi et leur encadrement au cours de ces trois années et surtout pour m'avoir donné, avec Lionel BOUCHER ancien chef du LMN, la chance de vivre cette expérience extraordinaire. Merci à Christian PASSARD et Jean Luc MA pour avoir accepté de faire appel à leur mémoire et aidé à répondre à bon nombre d'interrogations. Merci à Emmanuelle CLAMOND BRACK du Laboratoire de Métrologie et d'Analyse Chimique (CEA, Marcoule), ancienne du LMN, et à Andreas HAVENITH de l'institut d'ingénierie nucléaire et transfert de technologie (RWTH-Aachen University), ancien de l'IEK-6, pour avoir accepté de partager leurs résultats qui ont en partie servi de bases aux études réalisées au cours de cette thèse.

Je tiens également à remercier l'ensemble des membres du LMN qui m'ont accueilli dans la joie et le bon humour ... et pour avoir partagé un peu de leur folie ... merci à Fanny JALLU qui a repris la dure tâche de chef de tribu après Lionel BOUCHER, merci à Sophie GRANDJEAN, Christophe ROURE, Bernard CORNU, Eric SIMON, Nicolas HUPONT, Cyrille ELEON, Olivier GUETON, Rodolphe ANTONI, Nicolas ESTRE (alias Nico), Joël LORIDON, Caroline DESPREZ, Pierre Guy ALLINEI, Laurent CHRISTIN, Daniel ECK (alias Dani), Emmanuel PAYAN (alias Manu), Pascal CHAUSSONNET, Frédéric MORALES (alias Fred) et Christine QUINSON (alias Cricri). Merci à Alain MARIANI et Jean Luc PETTIER qui, aujourd'hui, ont quitté le laboratoire pour pleinement profiter de leur retraite. Merci à Clément DEYGLUN, ancien doctorant aujourd'hui parti vers de nouveaux horizons. Merci également aux nouveaux arrivants, Léonie BERGE, Alix SARDET, Sébastien EVRARD, Laurent LOUBET, David TISSEUR et Damien MOULIN. Merci au futur docteur Benoît SIMONY (alias Ben) et aux futurs doctorants Marc KISTLER et Thomas MARCHAIS. Thomas qui, j'en suis sûr, saura assurer pleinement la relève ENSICANAISE. Mention spéciale à Alix et Ben, merci pour l'ensemble de vos relectures avisées et conseils de rédaction.

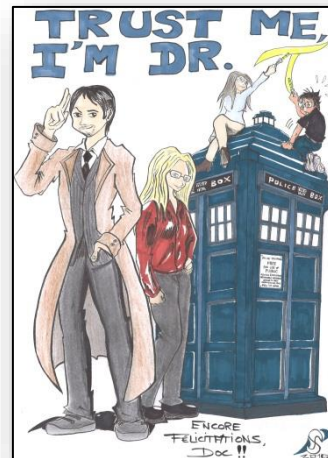
De par la collaboration avec l'institut allemand du FZJ, j'ai eu la chance inouïe d'effectuer l'intégralité de la deuxième année de thèse à Jülich. A ce titre, je tiens à adresser mes profonds remerciements à l'ensemble des personnes qui ont fait de cette année une année d'exception, emplies de très nombreux souvenirs. *Vielen Danke* à Eric MAUERHOFER bien sûr, mais aussi à Matthias ROSSBACH, Tsitohaina RANDRIAMALALA (alias Tsito), Frank MILDENBERGER, Manuel SCHUMANN, Lena KUHNE, Kathrin BAGINSKI, Corrado RIZZATO, Andreas NEUMANN et Andreas FITCHNER.

J'ai également une pensée pour mes amis et collègues doctorants rencontrés grâce à l'ASTHEC mais aussi en dehors, avec lesquels j'ai partagé de nombreux événements. Merci aux docteurs Alice PLANTAMP, Marcelle IBRAHIM, Ernesto GEIGER, Simon CLEMENT, et Matthieu LEMAIRE, me voici des vôtres maintenant. Merci et bon courage à tous ceux qui approchent du grand jour, Desislava JIVKOVA, Emma LUBEIGT, Anaïs LE FLOCH, Nur KUSUMANINDYAH, Jean Eric MATHONNET, Timothée KOOYMAN ... et aux nouveaux arrivants, Virginie HUY, Ludovic VOLAT, Axel RIZZO ... (oui j'ai quand même pensé à vous). Merci également à tous ceux que j'ai probablement oubliés et auxquels je présente mes plus plates excuses. Remerciements tout particuliers à Jean Eric et Marcelle pour votre petite visite express un weekend d'Octobre à Stuttgart.

Je souhaite profiter de ces quelques lignes pour également remercier les personnes qui ont contribué à ma présence en thèse en me ramenant sur le droit chemin de la recherche, à savoir les deux équipes au sein desquelles j'ai eu l'occasion d'effectuer mes stages de deuxième et troisième année d'école d'ingénieur. Merci au grand maître Jedi Thomas GRANGEON et à son ancien Padawan Julien ROGER, à René BRENNETOT, Pascal FICHET, Jean Pierre DEGROS, Florence GOUTELARD, Elodie LAPORTE, Céline GAUTIER, Pascale PERRET, Christèle COLIN, Michèle COPPO et Ginette MERCHERS du Laboratoire d'Analyse en Soutien aux Exploitant (CEA, Saclay). Merci à Susanne KREIM, Vladimir MANEA, Frank WIENHOLTZ et Christopher BORGMANN de l'équipe ISOLTRAP (ISOLDE, CERN). Merci à tous pour votre accueil, votre encadrement et votre bonne humeur qui ont fait de ces expériences passées des moments clés.

Je remercie aussi l'ensemble des membres de ma famille et de mon entourage, amis, collègues musiciens et danseurs, Bretons, et même Normands, pour leur soutien, leurs encouragements et leurs félicitations. Je tiens à remercier tout particulièrement ma compagne, Krisha KING (alias Kris), pour être restée présente et à l'écoute durant ces années, et ce malgré la distance.

Je terminerai par une mention spéciale à deux artistes, Kris et Ben, merci pour l'ensemble de vos dessins et illustrations.



*Merci braz !!!*

# Table des matières

<b>Introduction</b> .....	<b>7</b>
<b>Chapitre I : Etat de l'art</b> .....	<b>13</b>
I.    DECHETS RADIOACTIFS.....	13
I.1.  Classification.....	13
I.2.  Stockage.....	15
II.   CARACTERISATION NON DESTRUCTIVE.....	16
II.1.  Les différentes sources de neutrons.....	16
II.2.  L'activation neutronique.....	17
II.3.  La spectrométrie gamma.....	19
II.4.  Seuil et limite de détection.....	25
III.  LES APPLICATIONS DE L'ACTIVATION NEUTRONIQUE.....	25
III.1.  La caractérisation élémentaire.....	25
III.2.  La caractérisation des matières nucléaires.....	28
IV.   OUTILS UTILISES POUR LA THESE.....	31
IV.1.  Moyens expérimentaux.....	31
IV.2.  Outils de simulation.....	34
<b>Chapitre II : Validation du modèle MCNP de la cellule MEDINA</b> .....	<b>37</b>
I.    INTRODUCTION.....	37
II.   MESURES D'ECHANTILLONS SIMPLES.....	38
III.  SIMULATIONS MCNPX.....	45
III.1.  Modèle numérique.....	45
III.2.  Première approche basée sur l'estimateur de flux gamma F5.....	47
III.3.  Seconde approche basée sur estimateur de flux neutron F4.....	48
IV.   COMPARAISON ENTRE SIMULATIONS ET MESURES EXPERIMENTALES.....	52
V.    CONCLUSION.....	60
<b>Chapitre III : Caractérisation des matières nucléaires par la mesure du rayonnement gamma retardé de fission</b> .....	<b>63</b>
I.    INTRODUCTION.....	63
II.   TAUX D'EMISSION DES RAYONNEMENTS GAMMA RETARDES.....	64
II.1.  Mesure des rayonnements gamma retardés dans la cellule REGAIN.....	<b>Erreur ! Signet non défini.</b>
III.  COMPARAISON DES TAUX D'EMISSION MESURES ET TABLES.....	73
IV.   PERFORMANCES POUR DES FUTS DE DECHETS DANS LA CELLULE MEDINA.....	78
IV.1.  Modèle numérique MCNP.....	78
IV.2.  Calcul du taux de fission.....	79
IV.3.  Calcul du signal des rayonnements gamma retardés.....	81
IV.4.  Limites de détection.....	83
IV.5.  Incertitude de répartition de la matière fissile.....	87
IV.6.  Interférence de l'isotope <sup>238</sup> U.....	89
V.    CONCLUSION.....	92
<b>Chapitre IV : Etude d'amélioration du blindage du détecteur de la cellule MEDINA</b> .....	<b>95</b>
I.    INTRODUCTION.....	95
II.   AMELIORATION DU BLINDAGE DU DETECTEUR.....	97

III.	VALIDATION EXPERIMENTALE DE L'EFFET DES ECRANS .....	111
III.1.	<i>Mesures dans la cellule MEDINA</i> .....	111
III.2.	<i>Simulation MCNP et comparaison des résultats</i> .....	116
IV.	CONCLUSION .....	120
	<b>Conclusion</b> .....	<b>123</b>
	<b>Perspectives</b> .....	<b>127</b>
	<b>Références bibliographiques</b> .....	<b>131</b>
	<b>Annexe 1 : Chaines de décroissance des isotopes émetteurs de rayonnements gamma retardés de fission</b> .....	<b>147</b>
	<b>Annexe 2 : Calculs des produits de fission émetteurs des rayonnements gamma retardés</b> .....	<b>155</b>
2.1.	<i>Calculs d'évolution pendant l'irradiation</i> .....	155
2.2.	<i>Calculs d'évolution après l'irradiation</i> .....	156
	<b>Annexe 3 : Méthode analytique de détermination des limites de détection des rayonnements gamma retardés de fission</b> .....	<b>159</b>
	<b>Annexe 4 : Efficacité des blindages testés par simulation MCNP</b> .....	<b>177</b>
	<b>Annexe 5 : Test de l'outil de traitement des spectres gamma SINBAD</b> .....	<b>181</b>
	<b>Table des figures</b> .....	<b>187</b>
	<b>Liste des tableaux</b> .....	<b>194</b>
	<b>Abstract</b> .....	<b>199</b>
	<b>Résumé</b> .....	<b>202</b>

# Introduction

L'ensemble des applications du nucléaire génère des déchets radioactifs, catégorisés en fonction de critères spécifiques et propres à chaque pays. A chaque catégorie est associée une filière de gestion, dont certaines sont plus onéreuses que d'autres. Par exemple, les stockages en surface et ceux en couche géologique profonde présentent des écarts de coût très significatifs. Il est donc nécessaire de caractériser précisément les colis de déchets pour les orienter vers la filière la plus adaptée.

En France, les déchets sont répartis en cinq catégories, en fonction de leur niveau d'activité et des périodes radioactives des radioéléments qu'ils contiennent. Les déchets de très faible activité (TFA) et ceux de faible et moyenne activité à vie courte (FMA-VC) sont actuellement stockés sur deux sites de surfaces, respectivement Cires et CSA [ANDRA15]. Un centre de stockage géologique profond, CIGEO [CIGEO12], est en projet pour accueillir les déchets de moyenne activité à vie longue (MA-VL) et de haute activité (HA). Un second projet est également à l'étude pour traiter la problématique des déchets de faible activité à vie longue (FA-VL).

En Allemagne, la classification s'appuie sur la capacité des déchets à générer, ou non, de la chaleur [BFS15a]. Celles-ci s'apparentent respectivement aux catégories françaises FMA-VC et MA-VL/HA. Un centre de stockage géologique dans l'ancienne mine de fer KONRAD est actuellement en cours d'aménagement pour les déchets à pouvoir exothermique négligeable. Quant aux déchets dit thermiques, qui comprennent également les combustibles irradiés, des études sont en cours concernant la sélection d'un site de stockage, incluant le choix initial de l'ancienne mine de sel de Gorleben [BFS15b].

Pour l'ensemble des sites de stockages, il est essentiel de s'assurer que les colis de déchets radioactifs ne représentent aucun danger, présent ou futur, pour l'homme et l'environnement, non seulement du point de vue radiologique mais également chimique [AIEA03]. Ce dernier point est d'autant plus sensible que, contrairement aux éléments radioactifs, la dangerosité des toxiques chimiques (béryllium, bore, chrome, nickel, arsenic, sélénium, cadmium, gadolinium, mercure, plomb, uranium) persiste au cours du temps.

Les processus qualité garantissent une connaissance détaillée de la composition des colis de déchets produits actuellement. Les producteurs eux-mêmes réalisent une série de mesures en ligne, que ce soit des analyses radiochimiques destructives sur échantillons pour les procédés d'élaboration de déchets homogènes, ou des mesures nucléaires non destructives (imagerie X ou  $\gamma$ , spectrométrie gamma, mesures neutroniques) pour les déchets technologiques hétérogènes. De plus, des contrôles de conformité sont réalisés sur quelques colis prélevés aléatoirement par l'ANDRA (Agence Nationale pour la gestion des Déchets Radioactifs), en France, avant leur acceptation en centre de stockage. Ces mesures d'expertises sont réalisées notamment par le CEA (Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives) pour le compte de l'ANDRA. Le CEA peut aussi être sollicité par des producteurs (les propres installations du CEA, notamment, mais aussi EDF, AREVA, BELGOPROCESS, etc.) pour réaliser des expertises sur certains colis ou pour dimensionner leurs postes de mesures. Cette expertise se trouve notamment au Laboratoire de Mesures Nucléaires du CEA Cadarache. On peut aussi souligner que la caractérisation de certaines catégories de déchets anciens



peut s'avérer particulièrement difficile car la connaissance de l'historique de production et de leur contenu physique, chimique et radiologique peut présenter des lacunes. Dans ce cas, le besoin de caractérisation par des mesures nucléaires non destructives est encore plus crucial.

Les mesures nucléaires non destructives sont utilisées pour obtenir une caractérisation rapide de l'ensemble du colis de déchets sans porter atteinte à son intégrité, par comparaison aux analyses radiochimiques qui nécessitent un prélèvement d'échantillons et leur préparation en laboratoire. Les premières peuvent donc permettre la caractérisation systématique d'un grand nombre de colis ou de grands volumes de déchets, tandis que les secondes permettent d'atteindre de très grandes sensibilités mais ne sont représentatives que des échantillons prélevés. Ces deux familles de méthodes de caractérisation sont donc utilisées de façon complémentaire dans l'industrie nucléaire.

Les méthodes de mesure nucléaire non destructives utilisées couramment pour la caractérisation des déchets radioactifs sont les suivantes.

- L'imagerie X : comme dans le domaine médical, les techniques d'imagerie vont de la simple radiographie aux méthodes de tomodensitométrie les plus complexes. Elles donnent accès au contenu physique des colis : densité, taille, forme et position des déchets et matériaux d'enrobage ou de protection biologique. L'utilisation d'une source de rayonnements X de haute énergie produits par freinage d'électrons issus d'un accélérateur linéaire (LINAC), permet l'analyse des colis de gros volume et de forte densité.
- La spectrométrie gamma : cette méthode généralement facile à mettre en œuvre (technique passive, sans source externe de rayonnements), permet d'identifier et de déterminer l'activité de nombreux radioéléments émetteurs gamma. Cependant, la correction de l'atténuation des rayonnements dans les colis de déchets peut générer des incertitudes importantes et cette méthode est généralement peu adaptée aux colis hétérogènes de grand volume et à ceux de forte densité.
- Les mesures neutroniques passives et actives : le comptage passif est généralement utilisé en complément de la spectrométrie gamma pour caractériser des colis riches en plutonium, *a fortiori* quand les raies de ce dernier sont rendues non détectables par des émetteurs gamma plus intenses ( $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , par exemple). Il est cependant sujet à des perturbations en présence de réactions ( $\alpha, n$ ) dues à des émetteurs alpha intenses comme le  $^{241}\text{Am}$ , ce qui nécessite la mise en œuvre de techniques de comptage des coïncidences pour sélectionner le signal dû aux fissions spontanées ( $^{240}\text{Pu}$  notamment). L'émission neutronique passive du plutonium peut cependant aussi être masquée par la présence d'autres émetteurs intenses par fission spontanée comme les isotopes  $^{242}\text{Cm}$  et  $^{244}\text{Cm}$ . L'interrogation neutronique active, avec détection des neutrons prompts et retardés de fission, est alors mise en œuvre, par exemple pour les déchets issus du retraitement des combustibles usés pour lesquels la spectrométrie est inopérante pour mesurer le plutonium (colis très irradiants) et la mesure neutronique passive dominée par l'émission des isotopes  $^{242}\text{Cm}$  et  $^{244}\text{Cm}$ . On peut aussi préciser que les mesures neutroniques nécessitent la connaissance de la composition isotopique des émetteurs spontanés ( $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ ) ou des isotopes fissiles ( $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ). Elles sont aussi

sensibles aux matériaux hydrogénés et aux absorbants neutroniques, notamment en interrogation neutronique active.

Des travaux de R&D sont en cours afin d'étudier de nouvelles méthodes complémentaires comme l'interrogation photonique active (photofission) pour la mesure de la quantité de matière fissile dans des colis de gros volume, ou encore l'activation neutronique, étudiée au cours de cette thèse, qui consiste à mesurer les rayonnements gamma induits par irradiation neutronique pour caractériser des éléments stables (comme les toxiques chimiques), voire aussi des matières nucléaires (uranium, plutonium) comme nous le verrons.

Découverte à la fin des années 30, l'activation neutronique s'est fortement développée grâce à l'apparition de détecteurs de plus en plus performants, des scintillateurs de type NaI(Tl) utilisés initialement aux semi-conducteurs de type germanium hyper pur actuels. Réalisées à l'origine à l'aide de sources de neutrons isotopiques (RnBe, AmBe,  $^{252}\text{Cf}$ , par exemple), ou auprès de réacteurs nucléaires, l'apparition des générateurs électriques de neutrons (tubes scellés où sont accélérés des ions de deutérium pour produire des neutrons par réactions de fusion D-D ou D-T), facilement utilisables et transportables, a largement contribué au développement de cette méthode de caractérisation. Aujourd'hui, l'activation neutronique est utilisée ou étudiée pour des applications dans un très grand nombre de domaines (nucléaire, médical, environnemental, industriel, sécurité, etc.). La détection des rayonnements gamma prompts de capture radiative permet notamment de mesurer les éléments non radioactifs, tels que les toxiques chimiques.

Une classification optimale des colis de déchets radioactifs nécessite une connaissance précise de l'activité de ces derniers. Un des principaux objectifs est la mesure de l'activité alpha, dont les principaux émetteurs à vie longue sont les isotopes  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ , et  $^{240}\text{Pu}$  qui peuvent être *a priori* mesurés par spectrométrie gamma. Toutefois, les émissions gamma de ces isotopes, et plus particulièrement du plutonium, peuvent être masquées par la forte émission gamma de certains colis (présence de produits de fission et d'activation). Dans ce cas, la quantité d'isotope  $^{240}\text{Pu}$  peut être déterminée par mesure neutronique passive. Cette méthode reste néanmoins limitée en présence des isotopes  $^{242}\text{Cm}$  et  $^{244}\text{Cm}$ . La mesure de neutrons prompts et retardés de fission par interrogation neutronique peut alors être utilisée pour déterminer la quantité d'uranium et de plutonium [Raoux03, Perot04].

Une approche complémentaire envisagée, applicable dans la cellule d'activation neutronique pulsée MEDINA, est la mesure des rayonnements gamma retardés de fission. Celle-ci permettrait, dans un premier temps, de déterminer la masse fissile contenue dans les colis de déchets radioactifs, paramètre de classification essentiel à la sûreté des centres de stockage. Dans un second temps, elle pourrait aussi permettre de distinguer les contributions au signal de fission des isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$  en exploitant leurs différences de rendements de fission, grâce à des ratios de leurs raies gamma retardées.

Les travaux de thèse exposés ici s'inscrivent dans le cadre d'une collaboration entre le Laboratoire de Mesures Nucléaires du CEA Cadarache et la section Gestion des déchets radioactifs et la sûreté des réacteurs de l'Institut pour l'Energie et la recherche sur le Climat (IEK-6) du Forschungszentrum Jülich (FZJ), en Allemagne. Cette collaboration a été initiée en 2009 sur la thématique de la caractérisation des toxiques chimiques dans les déchets radioactifs par activation neutronique au moyen des cellules REGAIN (Recherche des Gamma d'Activation et Irradiation

Neutronique) [Ma12] et MEDINA (*Multi Element Determination based on Instrumental Neutron Activation*) [Mauerhofer14]. La cellule REGAIN du LMN n'étant aujourd'hui plus opérationnelle, suite à la cessation d'activité de l'installation nucléaire où elle était implantée, les travaux de la collaboration se poursuivent avec la cellule MEDINA du FZJ. Une partie des travaux exposés dans ce mémoire au chapitre III utilise néanmoins des résultats expérimentaux obtenus dans REGAIN avant cette thèse.

La cellule MEDINA, constituée de blocs de graphite, a été conçue pour caractériser des fûts de 200 L (mais elle permet de mesurer des colis jusqu'à 225 L) au moyen d'un générateur de neutrons de 14 MeV (GENIE 16, SODERN). La mesure des rayonnements gamma prompts et retardés d'activation est réalisée à l'aide d'un détecteur germanium hyper pur de haute efficacité relative (plus de 100%). Bien que les performances de la cellule pour la caractérisation des toxiques chimiques n'atteignent pas encore les seuils de déclaration indicatifs fixés par l'ANDRA en France pour le stockage CIGEO, qui sont de l'ordre du mg/kg (*i.e.* du ppm) en ce qui concerne les toxiques chimiques [ANDRA02], elles satisfont les exigences de caractérisation en vue du stockage KONRAD [Havenith15].

Ce mémoire comporte quatre parties principales, complétées par des annexes techniques pour décrire des outils ou approches complémentaires :

➤ Etat de l'art

Le premier chapitre décrit le cadre de ces travaux et l'état de l'art sur l'activation neutronique, en particulier son utilisation pour caractériser les déchets radioactifs, avec notamment les cellules REGAIN et MEDINA.

➤ Validation du modèle numérique MCNP de la cellule MEDINA [Nicol15]

Ce deuxième chapitre de la thèse est consacré à la validation des résultats obtenus avec le modèle MCNP de la cellule MEDINA en les confrontant à des résultats expérimentaux. Le code de transport de particules par méthode Monte Carlo, MCNP, est en effet largement utilisé pour étudier *a priori* les performances pour diverses applications et pour optimiser le design des cellules de mesure avant d'entreprendre des réalisations ou modifications lourdes et coûteuses. Toutefois, il est avant tout nécessaire de valider le modèle numérique (géométrie, composition et densité des matériaux) et les méthodes de calcul (avec différents estimateurs MCNP comme on le verra). Des mesures de rayonnements gamma prompts de capture radiative d'échantillons d'éléments purs ou de composés chimiques réalisées dans MEDINA ont donc été simulées, avec différentes approches de calcul et bases de données nucléaires car des lacunes ont déjà été constatées dans ces dernières au niveau de la production des rayonnements gamma prompts d'activation neutronique [Ma12].

➤ Etude de la mesure des rayonnements gamma retardés de fission [Nicol14, Nicol16b]

Le troisième chapitre aborde un nouveau type de mesure dans la cellule MEDINA, initialement prévue pour la mesure des rayonnements gamma prompts d'activation neutronique. En modifiant les paramètres temporels d'irradiation, il est possible de mesurer les rayonnements gamma retardés et plus particulièrement ceux émis lors de la décroissance des produits de fission. Les rayonnements gamma retardés significatifs, émis à la suite des fissions induites sur les isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$ , ont tout d'abord été

identifiés à partir de mesures sur des échantillons métalliques dans la cellule REGAIN du LMN [Clamond05]. Ces mesures ont permis de déterminer les rendements d'émission des rayonnements gamma retardés correspondant à chaque produit de fission identifié. Afin de s'assurer de la pertinence des valeurs de rendements, ceux-ci sont comparés aux données de la littérature. Par la suite les rendements expérimentaux sont utilisés pour calculer les sensibilités de la méthode appliquée à un fût de 225 L dans la cellule MEDINA. Pour cela, le modèle MCNP de la cellule est utilisé pour déterminer les taux de fission dans des colis de 225 L contenant une matrice d'enrobés bitumineux ou de béton. Ces deux types de matrice sont représentatifs de familles de colis de déchets produits en France et en Allemagne. Le signal mesurable estimé dans une seconde étape de calcul avec le code MCNP, pour tenir compte de l'efficacité de détection des rayonnements gamma retardés, est ensuite combiné avec une mesure du bruit de fond actif de la cellule MEDINA avec un colis béton maquette. Ceci permet, *in fine*, d'estimer les limites de détection pour chaque raie gamma retardée d'intérêt, en grammes d'isotope  $^{235}\text{U}$  ou  $^{239}\text{Pu}$ . Une approche alternative, s'appuyant sur des paramètres mesurables dans MEDINA et des formules analytiques, est aussi présentée en annexe 3 pour l'estimation de ces limites de détection, et sa cohérence avec l'approche par simulation Monte Carlo MCNP est vérifiée.

➤ Etude d'optimisation du blindage du détecteur de la cellule MEDINA [Nicol16a]

Dans ce quatrième chapitre, le modèle MCNP de la cellule MEDINA a été utilisé afin d'étudier de multiples configurations dans l'optique d'améliorer le blindage du détecteur germanium. En effet, la très grande quantité de graphite ainsi que la présence d'éléments à fortes sections efficaces de capture et d'activation neutronique induit un bruit de fond gamma important. De plus la présence du détecteur au germanium hyper pur au sein de la même enceinte que le générateur de neutrons de 14 MeV induit une dégradation progressive de sa résolution en énergie, suite aux interactions des neutrons rapides dans le cristal. La réduction du bruit de fond gamma vise donc à améliorer les sensibilités de mesure des rayonnements gamma prompts et retardés. De plus, en limitant l'activation et la dégradation du cristal par les neutrons de haute énergie, il sera aussi possible d'utiliser des sources de neutrons plus intenses, améliorant encore les performances de la cellule.

*In fine*, une synthèse des principaux résultats et des apports essentiels de ces travaux de thèse est présentée, suivie de perspectives d'amélioration de la cellule MEDINA et d'autres applications de la méthode d'activation neutronique pulsée.



# Chapitre I : Etat de l'art

---

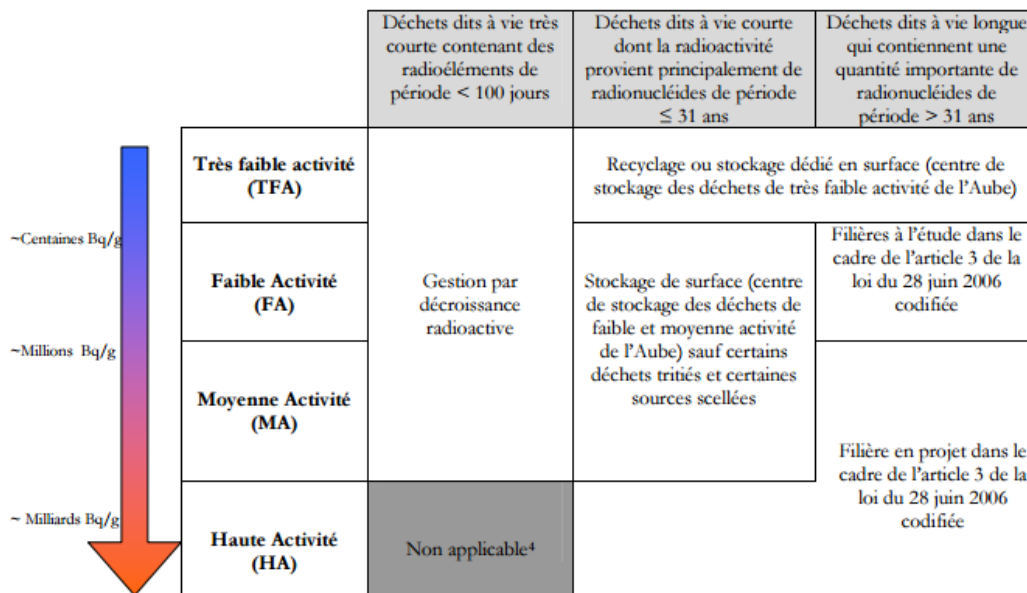
## I. Déchets radioactifs

### I.1. Classification

Depuis près de 60 ans, les activités du nucléaire, non seulement la production électrique, mais également les secteurs de la recherche, du médical, de la défense ou encore de l'industrie non-nucléaire produisent des déchets radioactifs. Afin d'optimiser le stockage de ceux-ci, un classement sur la base de leur niveau d'activité et de leur période radioactive est mis en place en France. D'après le Plan National de Gestion des Matières Nucléaire de 2013-2015 [ASN13], la classification adoptée, illustrée en Figure 1, est la suivante :

- les déchets de haute activité (HA) qui représentent une très faible part du volume des déchets radioactifs (0,2 %) mais concentrent à eux seuls 95 % de la radioactivité (voir Tableau 1). Les principaux types de colis classés dans cette catégorie sont les déchets vitrifiés obtenus suite au traitement des combustibles usés ;
- les déchets de moyenne activité à vie longue (MAVL) qui proviennent eux aussi en partie du traitement des combustibles, mais également des activités d'exploitation et de maintenance des usines de traitement (déchets de structure, coques et embouts formant la gaine du combustible). Ils représentent 4 % de la radioactivité totale des déchets radioactifs Français. Ces déchets sont le plus souvent compactés, regroupés dans des colis et maintenus dans du ciment. Des déchets technologiques (outils usagés, équipements...) ou encore des déchets issus du traitement des effluents comme les boues bitumées peuvent également faire partie de cette catégorie ;
- les déchets de faible activité à vie longue (FAVL) qui sont majoritairement constitués de de graphite et déchets radifères. Les premiers proviennent principalement du démantèlement des réacteurs de la filière uranium naturel graphite gaz (UNGG). Les seconds proviennent en majorité d'activités industrielles non-électronucléaires (traitement de minéraux contenant des terres rares, ...). Cette catégorie FAVL comprend également d'autres types de déchets tels que certains colis d'enrobés bitumineux anciens, des résidus de traitement de conversion de l'uranium... ;
- les déchets de faible activité et moyenne activité à vie courte (FMA-VC) qui sont essentiellement issus de l'exploitation, de la maintenance et du démantèlement des centrales nucléaires, des installations du cycle du combustible, des centres de recherche et pour une faible partie des activités médicales. Ils représentent la grande majorité des déchets radioactifs (63 % en volume) ;
- les déchets de très faible activité (TFA), de même origine que les précédents mais avec une activité moindre ;

- les déchets à vie très courte qui proviennent quant à eux principalement du secteur médical ou de la recherche. Après entreposage sur leur site d'utilisation le temps de leur décroissance radioactive, ils sont ensuite éliminés dans une filière conventionnelle qui correspond à leurs caractéristiques physiques, chimiques et biologiques.



<sup>4</sup>La catégorie des déchets de haute activité à vie très courte n'existe pas.

Figure 1. Principe de classification des déchets radioactifs [ASN13].

Tableau 1. Répartition des différentes activités ( $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ ), et des volumes de déchets radioactifs, en fonction des différentes classes [ASN13].

Catégorie	$\alpha$ (TBq)	$\beta\gamma$ vie courte (TBq)	$\beta\gamma$ vie longue (TBq)	Activité totale (TBq)	Volume (m <sup>3</sup> )
HA	3 000 000	102 000 000	300 000	≈ 105 000 000	2 700
MA-VL	30 000	3 800 000	1 000 000	≈ 4 800 000	40 000
FA-VI	300	8 000	4 000	≈ 12 000	87 000
FMA-VC	800	19 000	7 000	≈ 27 000	830 000
TFA	2	2	1	5	360 000

Les volumes mentionnés dans le Tableau 1 sont indiqués en m<sup>3</sup> équivalent conditionné, représentant le volume des déchets après conditionnement.

Toutefois, cette classification, valable en France n'est pas utilisée dans tous les pays. Dans le cas de l'Allemagne par exemple, les déchets sont classés selon leur capacité à générer de la chaleur qui pourrait compromettre l'intégrité des barrières techniques et géologiques du site dans lequel ils sont stockés [BFS15a]:

- les déchets à pouvoir exothermique négligeable (≈ 120 000 m<sup>3</sup>),
- les déchets à haut pouvoir exothermique (c'est-à-dire les déchets vitrifiés de haute activité et les combustibles usés) (580 m<sup>3</sup>).

Un descriptif pour les pays membres de l'Organisation de Coopération et de Développement Economiques / Agence pour l'Énergie Nucléaire est disponible [OCDE05]. On notera que, contrairement à la plupart des pays, la France n'applique pas de seuil de libération, en termes d'activité artificielle, en deçà duquel un déchet peut être considéré comme non nucléaire.

## I.2. Stockage

Dans le cas de la France donc, la classification aboutit à 5 catégories, dont deux pour lesquelles les filières de gestion sont encore à l'étude. Concernant celles-ci, un projet de stockage géologique CIGEO (Figure 2) est actuellement étudié dans l'Est de la France, à la limite de la Meuse et la Haute-Marne [CIGEO12]. Dans le cas de l'Allemagne, l'ancienne mine de fer de Konrad (Figure 2) est en cours d'aménagement pour les déchets à pouvoir exothermique négligeable. Le processus de sélection du site de stockage pour les déchets à haut pouvoir exothermique est en cours, incluant notamment l'ancienne mine de sel de Gorleben [BFS15b].

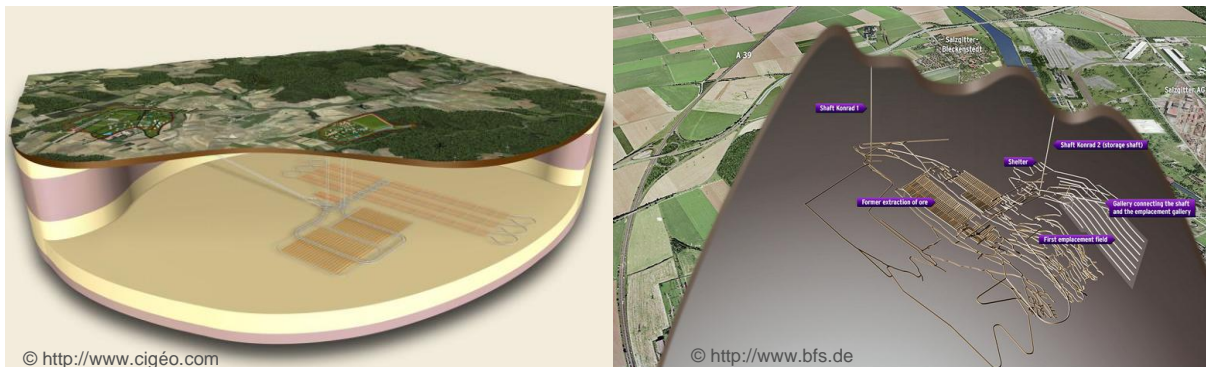


Figure 2. Représentation des projets de stockage géologique CIGEO (France) et KONRAD (Allemagne).

Ces centres de stockages doivent garantir la non-contamination de l'environnement sur le très long terme du point de vue radiologique, mais aussi de celle due aux toxiques chimiques (B, Be, Cl, As, Se, Cd... jusqu'aux métaux lourds Hg, Pb, U...). Il est donc essentiel, afin d'optimiser la gestion des déchets radioactifs, de les caractériser le plus précisément possible au niveau de leur radioactivité (niveau et période radioactive), mais aussi de certains éléments stables potentiellement nocifs afin de s'assurer de l'absence de risque envers l'environnement ou la santé [AIEA03]. Les processus d'assurance qualité garantissent une connaissance détaillée du contenu des déchets actuels, mais une méthode de caractérisation pour effectuer des contrôles peut s'avérer nécessaire dans le cas des déchets « historiques » [ASN08], dont la connaissance a priori est parfois limitée et qui sont très hétérogènes. Des méthodes analytiques permettent de mesurer les substances non radioactives dans les colis de déchets radioactifs telles que la spectrométrie de masse ICP-MS, la spectrométrie d'émission atomique ICP-AES, ... [NF11]. Toutefois ces méthodes nécessitent d'ouvrir les colis de déchets, de prélever des échantillons, de les préparer (dissolution, ...) avant de pouvoir effectuer la mesure. Bien que très précises, ces méthodes destructives ne sont représentatives du colis de déchets entier que si l'élément recherché y est réparti de façon homogène, et de plus elles portent atteinte à l'intégrité physique de la barrière de protection que représente le colis de déchets. Les opérations de prélèvement, d'analyse des échantillons et de reconditionnement des colis sont longues, coûteuses et génèrent des déchets supplémentaires. Une méthode de mesure non destructive présente donc l'intérêt de pouvoir apporter une information rapide sur l'intégralité du contenu du colis de déchets sans affecter la barrière que constitue celui-ci.



## II. Caractérisation non destructive

Les mesures nucléaires non destructives ont pour but premier de déterminer l'activité d'un colis de déchets sans nécessiter de prélèvement d'échantillon. Pour cela, il est possible d'exploiter le rayonnement émis spontanément par les noyaux essentiellement gamma et neutronique car les particules chargées ( $\beta$ ,  $\alpha$ , produits de fission) ne franchissent pas les barrières que constituent la matrice et le conteneur des colis. Toutefois, ce principe de mesure passive ne fonctionne qu'en présence d'émission radioactive en quantité suffisante. Si l'on souhaite quantifier des isotopes stables n'émettant aucun rayonnement, ou des matières radioactives n'émettant pas ou trop peu de rayonnement mesurable, il est possible de les stimuler afin qu'ils émettent un rayonnement spécifique mesurable. On parle alors de mesures actives. Ce type de mesure nécessite de soumettre l'échantillon à un flux de rayonnement interrogateur, neutronique (mesure des neutrons de fissions induites [Gozani13] ou des rayonnements gamma d'activation) ou photonique de haute énergie (gamma ou RX, comme en activation neutronique [Carasco16] ou en photofission [Carrel07]) pour pouvoir traverser les barrières de colis de déchets. On s'intéresse dans cette thèse aux mesures de rayonnement gamma d'activation neutronique (voir paragraphe 2).

### II.1. Les différentes sources de neutrons

Afin d'induire des réactions neutroniques, plusieurs sources de neutrons sont disponibles:

- les sources  $^{252}\text{Cf}$  qui produisent des neutrons d'énergie moyenne 2,1 MeV par fission spontanée, émettant  $2,30 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$  par microgramme, sur  $4\pi$  stéradian,
- les sources  $\text{AmBe}$  produisant des neutrons d'énergie moyenne 4,2 MeV, par réaction ( $\alpha, n$ ), émettant sur  $4\pi$  stéradian,
- les sources de photo neutrons consistant à utiliser une source gamma suffisamment énergétique pour exciter une cible de béryllium ou de deutérium par réaction ( $\gamma, n$ ). Ce type de source nécessite toutefois une forte activité gamma à cause du faible taux de production photo-neutronique,
- les réacteurs produisant des neutrons de fission d'énergie moyenne voisine de 2 MeV (flux thermique jusqu'à plus de  $1,5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$  au réacteur à haut flux de l'Institut Laue-Langevin de Grenoble, France),
- les sources de spallation consistant à propulser des protons (1 GeV) sur une cible de métal lourd (Pb, W, U, ...),
- les générateurs de neutrons produisant, de façon continue ou pulsée, des neutrons de 2,5 MeV par fusion de noyaux de deutérium ou des neutrons de 14 MeV par fusion de deutérium et de tritium, d'émission neutronique de l'ordre de  $10^8 \text{ s}^{-1}$  sur  $4\pi$  stéradian (GENIE16, SODERN), et jusqu'à  $10^{10} \text{ s}^{-1}$  pour le GENIE35.

Toutes ces sources produisent des neutrons de plusieurs MeV, alors que certaines réactions d'activation sont optimales dans le domaine des énergies thermiques comme la capture radiative ( $n,\gamma$ ) ou la fission. Dans ce cas il est donc nécessaire d'utiliser un modérateur afin de ralentir les neutrons. Les modérateurs les plus couramment utilisés sont :

- des matériaux riches en hydrogène (eau naturelle  $H_2O$ , polyéthylène  $C_2H_4$ , ...) dont les noyaux offrent la meilleure thermalisation possible, mais avec une section efficace d'absorption également élevée ;
- l'eau lourde ( $D_2O$ ), plus onéreuse et qui offre une thermalisation moins efficace, mais dont l'isotope de l'hydrogène (D) possède une section efficace d'absorption neutronique très faible ;
- le carbone (graphite) qui est moins efficace que les précédents pour la thermalisation, mais qui possède aussi une faible section efficace d'absorption des neutrons et peut également servir de réflecteur, et ce pour un prix moindre que l'eau lourde.

## II.2. L'activation neutronique

Les mesures non destructives par activation neutronique consistent à exposer l'échantillon à un flux neutronique pendant un temps  $t_i$ , pendant lequel l'isotope émetteur est créé. Cette période est suivie, si nécessaire, d'un temps de transfert entre le dispositif d'irradiation et le système de mesure  $t_d$ , et enfin un temps de comptage  $t_c$ . Le signal utile peut alors s'exprimer comme suit :

$$S_\gamma = \frac{m \times \theta}{M} \times N_A \times \left( \int \sigma_E \times \phi_E dE \right) \times I_\gamma \times \varepsilon_\gamma \times \frac{1}{\lambda} \times (1 - \exp(-\lambda \times t_i)) \times \exp(-\lambda \times t_d) \times (1 - \exp(-\lambda \times t_c)) \quad (1)$$

Avec :

$m$  : masse de l'élément considéré (g)

$\theta$  : pourcentage isotopique naturel

$M$  : masse molaire de l'élément considéré (g)

$N_A$  : nombre d'Avogadro ( $6,02 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$ )

$\sigma_E$  : section efficace de capture de l'isotope, à l'énergie E ( $\text{cm}^2$ )

$\phi_E$  : flux neutronique, à l'énergie E, ( $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ )

$I_\gamma$  : intensité d'émission de la raie  $\gamma$  (nombre de  $\gamma$  émis par désintégration du noyau radioactif activé)

$\varepsilon_\gamma$  : efficacité de détection de la raie gamma considérée (nombre de coups dans la raie d'absorption totale du spectre gamma par  $\gamma$  émis dans l'échantillon ou le colis)

$\lambda$  : constante radioactive (en  $\text{s}^{-1}$ , égale à  $\ln(2)/T_{1/2}$ , où  $T_{1/2}$  (s) est la période radioactive)

Cette configuration est bien adaptée au cas des isotopes ayant une demi-vie  $T_{1/2}$  du même ordre ou supérieure au temps total de mesure  $T_{tot} = t_i + t_d + t_c$ . Dans le cas où le temps de demi-vie est nettement inférieur, une procédure d'activation cyclique permet d'optimiser la mesure. On introduit alors un temps  $t_d'$  nécessaire pour replacer l'échantillon dans la cellule d'irradiation avant de le soumettre à nouveau au flux de neutron et la période d'un cycle de mesure est alors  $T = t_i + t_d + t_c + t_d'$ . Le temps total de mesure devient donc  $T_{tot} = n \times T$ ,  $n$  représentant le nombre de cycles effectués. Le signal utile détecté est la somme des signaux mesurés pendant les intervalles  $t_c$  et s'écrit [Givens70] :

$$\begin{aligned}
 S_\gamma = & \frac{m \times \theta}{M} \times N_A \times \left( \int \sigma_E \times \phi_E dE \right) \times I_\gamma \times \varepsilon_\gamma \times \frac{1}{\lambda} \times (1 - \exp(-\lambda \times t_i)) \\
 & \times \exp(-\lambda \times t_d) \times (1 - \exp(-\lambda \times t_c)) \\
 & \times \left[ \frac{n}{1 - \exp(-\lambda \times T)} - \frac{\exp(-\lambda \times T) \times (1 - \exp(-n \times \lambda \times T))}{(1 - \exp(-\lambda \times T))^2} \right]
 \end{aligned} \tag{2}$$

Avec les mêmes notations que précédemment.

Ces équations sont valables dans le cas d'un rayonnement gamma retardé, c'est-à-dire émis avec un délai de quelques ms à plusieurs minutes, voire d'avantage, après la phase d'irradiation, mais pour le rayonnement prompt de diffusion inélastique ou de capture radiative, l'irradiation et la mesure doivent se faire au sein du même dispositif pendant l'exposition au neutron.

Le signal utile détecté s'exprime alors sous la forme :

$$S_\gamma = \frac{m \times \theta}{M} \times N_A \times \varepsilon_\gamma \times I_\gamma \times t_m \times \left( \int \sigma_E \times \phi_E dE \right) \tag{3}$$

Avec les mêmes notations que précédemment, et  $t_m$  le temps de mesure ( $t_m = n \times t_c$ ).

Si la source ne peut pas fonctionner en régime pulsé, comme dans les systèmes historiques avec des sources isotopiques de neutrons (sauf utilisation de « shufflers » [Rinard01]) ou à proximité de réacteurs de recherche équipés d'un canal de neutrons thermiques, l'acquisition des rayonnements prompts est effectuée pendant l'irradiation. Ceci implique généralement un fort bruit de fond dû aux neutrons rapides dans le cas des sources isotopiques rendant la détection de la plupart des rayonnements de capture impossible. Aujourd'hui, et en particulier dans le cadre de cette thèse, l'activation neutronique est généralement mise en œuvre avec des générateurs de neutrons D-D ou D-T pouvant fonctionner en mode pulsé, permettant ainsi d'optimiser la mesure des rayonnements de capture entre les impulsions, les rayonnements de diffusion inélastique pouvant être mesurés pendant les impulsions, tel qu'illustré sur la Figure 3. On remarquera sur cette même figure qu'un temps d'attente après la fin de l'impulsion peut être ajouté afin de s'assurer que l'ensemble des neutrons de 14 MeV émis par le générateur D-T (ou de 2,5 MeV dans le cas d'un générateur D-D) se soient thermalisés avant l'ouverture de la fenêtre de mesure.

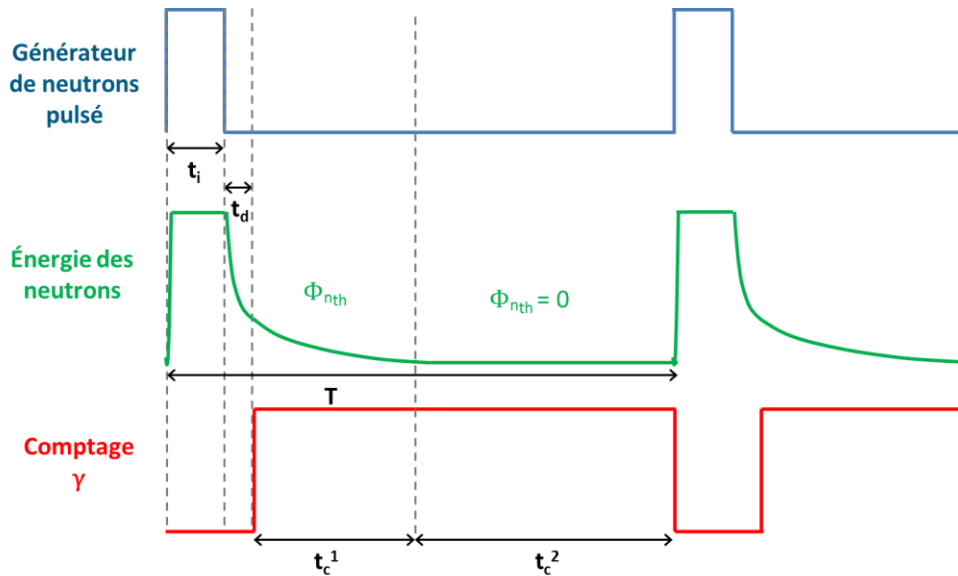


Figure 3. Schéma d'une irradiation pulsée ( $t_i$  durée d'une impulsion neutronique,  $T$  temps de répétition des impulsions) et d'une mesure en anti coïncidence avec  $t_c^1$  et  $t_c^2$  les temps de mesure entre les impulsions respectivement des rayonnements de capture et retardé (équation (3) équation (2)).

Dans le cas d'une irradiation pulsée, si la mesure est effectuée pendant l'impulsion, le terme  $\sigma_E$  de l'équation (3) fera référence à la section efficace de diffusions inélastique ( $n,n'\gamma$ ), et le terme  $t_m$  pourra s'exprimer comme  $n \times t_i$ ,  $n$  étant le nombre total d'impulsions du générateur. A l'inverse, si la mesure est effectuée entre les impulsions, le terme  $\sigma_E$  fera cette fois référence à la section efficace de capture radiative ( $n,\gamma$ ) et  $t_m$  sera égal à  $n \times t_c^1$ . Le temps  $t_c^2$  fait ici référence à la mesure du rayonnement gamma retardé entre les impulsions décrit précédemment (équation (2)). Celui est préférentiellement mesuré après disparition des neutrons thermiques afin de limiter les interférences avec les rayonnements gamma prompt de capture.

### II.3. La spectrométrie gamma

L'ensemble des méthodes de spectrométrie gamma sont décrites en détails dans la référence [Gilmore08], seules les informations rattachées à l'utilisation des détecteurs germanium hyper pur seront rappelées dans ce paragraphe.

Afin de mesurer des rayonnements gamma émis avec une énergie de plusieurs centaines de keV, comme ceux de capture radiative et de diffusion inélastique, deux catégories majeures de détecteurs sont envisageables : les scintillateurs inorganiques (NaI, BGO, LaBr<sub>3</sub>, ...) et les détecteurs semi-conducteurs au germanium hyper pur (Ge HP). De par la possibilité d'avoir des scintillateurs de grande taille (notamment NaI :Tl), de densité et de numéro atomique élevés, ceux-ci offrent une très bonne efficacité de détection. Toutefois, leur résolution en énergie est limitée, typiquement 7 % à 662 keV (largeur totale à mi-hauteur du pic) pour le cristal le plus utilisé d'iodure de sodium dopé au thallium (NaI:Tl), de l'ordre de 3 % pour le cristal de bromure de lanthane dopé au (LaBr<sub>3</sub>:Ce), ce qui est nettement moins que celle obtenue avec les détecteurs semi-conducteurs GeHP qui est de l'ordre de 0,2 %. Cette très bonne résolution permet de différencier des raies gamma proches en énergie, comme c'est le cas dans un spectre d'activation neutronique qui présente généralement une grande densité de pics. Les détecteurs GeHP sont donc préférés aux scintillateurs pour la spectrométrie gamma haute résolution, quand leurs contraintes de mise en œuvre peuvent être supportées. Ils nécessitent en effet un refroidissement à très basse température pour limiter le courant de fuite en

raison du faible gap du germanium (0,7 eV). C'est pour cette raison que le détecteur est refroidi avec de l'azote liquide (77 K) ou équipé d'un cryogénérateur électrique. Cette contrainte, ajoutée au coût élevé des monocristaux GeHP (notamment pour ceux de grand volume), peut conduire dans certains cas à privilégier des scintillateurs. Néanmoins, les détecteurs germanium sont particulièrement recommandés pour l'activation neutronique.

Un des inconvénients des cristaux semi-conducteurs est leur sensibilité aux neutrons rapides. Ces derniers, en plus d'exciter les noyaux de germanium (rayonnements gamma de diffusion inélastique, de capture, d'activation), créent des défauts dans le cristal qui pourront capter les porteurs de charges avant que ceux-ci n'atteignent l'électrode. Il s'ensuit une dégradation de la résolution en énergie qui se traduit par une traîne vers les basses énergies des pics photoélectriques (sous-estimation de l'énergie). Dans le cas de cristaux planaires de type n (dopage), les ordres de grandeur de la fluence de neutrons rapides induisant une déformation mesurable de la résolution, ou rendant inexploitable la mesure, sont respectivement de  $10^9 \text{ cm}^{-2}$  et  $10^{10} \text{ cm}^{-2}$  [Knoll10]. Des études ont montré que les cristaux type n sont beaucoup moins sensibles que ceux de type p, les raies gamma montrant la même déformation après une fluence de neutrons rapides près de 30 fois plus élevée [Pehl79]. On notera néanmoins qu'il est possible de corriger, en grande partie, les défauts induits dans le cristal par les neutrons rapides en augmentant progressivement la température du cristal (recuit). Typiquement, pour un germanium coaxial hyper pur de type n, une température d'une centaine de degré Celsius appliquée quelques heures permet de corriger les défauts induits par une fluence de neutron rapide de l'ordre de  $10^9 \text{ cm}^{-2}$  [Knoll10, Gilmore08].

Afin d'exploiter le signal délivré par le détecteur, celui-ci est suivi d'une chaîne de traitement électronique analogique ou numérique. La Figure 4 représente une chaîne de spectrométrie analogique classique composée de plusieurs modules assurant des fonctions d'amplification, de mise en forme, de filtrage et de codage de chaque impulsion, puis de traitement du spectre gamma. Dans le cas d'une chaîne numérique, l'ensemble de ces fonctionnalités, en dehors du préamplificateur qui reste un composant du détecteur situé au plus près du cristal GeHP pour des raisons d'adaptation d'impédance, sont regroupées dans un seul module, dans lequel le signal est d'abord numérisé avant d'être mis en forme (avec des filtres numériques) pour en déterminer l'amplitude.



Figure 4. Composants d'une chaîne de spectrométrie gamma classique.

Le préamplificateur collecte les charges générées par l'interaction des photons dans le cristal GeHP et assure l'adaptation d'impédance entre le détecteur et l'amplificateur. L'amplificateur met en forme chaque impulsion qui est ensuite convertie par le codeur pour être traitée par l'analyseur multicanaux, qui la classe dans le spectre gamma en fonction de son amplitude dans un canal dont le numéro est proportionnel à l'énergie déposée par le photon dans le détecteur. A chaque canal correspond un nombre d'impulsions détectées (Figure 5).

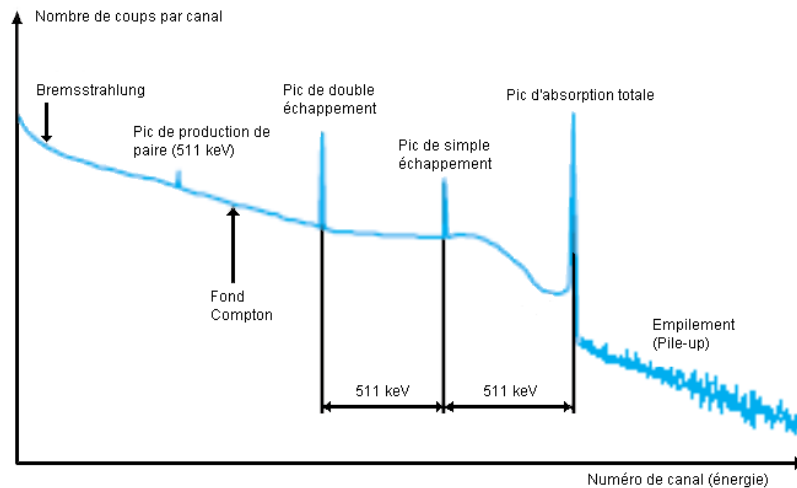


Figure 5. Spectre caractéristique d'un détecteur GeHP [Lyoussi05].

Le pic photoélectrique traduit un dépôt dans le cristal GeHP de l'énergie totale ( $E$ ) du photon incident par absorption photoélectrique, éventuellement précédée de diffusions Compton au sein du cristal. Lors de la diffusion Compton, il est cependant possible que le photon diffusé s'échappe du cristal GeHP, ce qui résulte en la détection d'une partie seulement de l'énergie du photon incident et se traduit par un continuum appelé fond Compton. En cas d'interaction par création de paires, comme cela peut se produire avec des rayonnements gamma de plusieurs MeV produits par activation neutronique, si les deux photons de 511 keV s'arrêtent dans le matériau, alors l'intégralité de l'énergie du photon initial est détectée, contribuant au pic photoélectrique. Si un ou les deux photons viennent à sortir du cristal GeHP, l'énergie mesurée sera inférieure de 511 keV ou 1022 keV, respectivement, à celle du photon incident, se traduisant par l'apparition dans le spectre de pics de simple et double échappement. On observe également un pic à 511 keV traduisant la détection de photons de 511 keV dus à des créations de paires se produisant en dehors du cristal. A basse énergie, on observe une composante du bruit de fond due au rayonnement de freinage (bremsstrahlung) induit par la décélération des électrons issue des interactions gamma-matière dans ou à proximité du détecteur. Enfin, à haute énergie, un phénomène d'empilement peut être observé en cas de taux de comptage élevé, lorsque plusieurs photons sont détectés au même moment et ne peuvent pas être discernés par le dispositif de rejet des empilements.

Pendant le traitement d'une impulsion par la chaîne de spectrométrie gamma haute résolution, celle-ci est dans l'incapacité de traiter un autre signal et on parle de temps mort. L'acquisition ne se faisant pas sur la totalité du temps de la mesure, on différencie donc :

- le temps réel correspondant à la durée de la mesure,
- le temps actif correspondant à la durée pendant laquelle le système est effectivement capable de traiter une impulsion (inférieur au temps réel).

Le temps mort, qui est la différence entre ces deux termes, est généralement exprimé en pourcentage du temps réel. On distingue deux types de temps mort : paralysable ou non.

Le temps mort non paralysable est illustré en Figure 6. Les impulsions survenant dans l'intervalle de temps correspondant au traitement d'une impulsion ne sont pas prises en compte, mais n'allongent pas le temps de blocage du système.

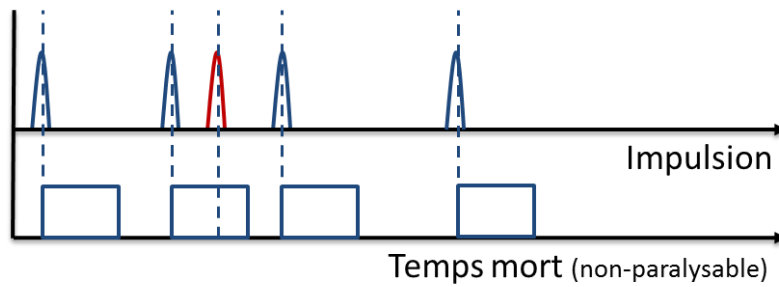


Figure 6. Perte d'impulsion (en rouge) dans le cas du temps mort non paralysable.

Ce type de temps mort peut s'observer par exemple au niveau des préamplificateurs à remise à zéro par transistor utilisés en cas de taux d'impulsions très élevé comme en activation neutronique pulsée. Dans ce type de préamplificateur, il n'y a pas de résistance de contre-réaction sur l'amplificateur opérationnel et les charges collectées à chaque impulsion entraînent une augmentation de la tension de sortie du préamplificateur sous la forme d'une marche, comme indiqué en Figure 7. Quand la tension d'alimentation du préamplificateur (par exemple 24 V) est atteinte, pour éviter le blocage, un transistor de remise à zéro permet de ramener la tension à une valeur nulle. Ce temps de remise à zéro correspond à un temps mort du préamplificateur, typiquement de l'ordre de la microseconde, que l'arrivée d'autres impulsions ne prolonge pas et qui est donc de type non paralysable. Un signal d'inhibition correspondant à ce temps mort est envoyé par le préamplificateur vers l'amplificateur pour ne pas créer d'artefacts.

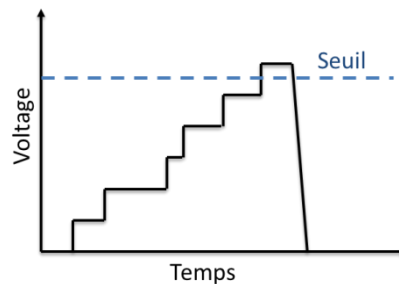


Figure 7. Fonctionnement du transistor reset.

Le temps mort paralysable, illustré en Figure 8, correspond quant à lui au cas où l'arrivée d'impulsions pendant que le système est déjà occupé entraîne un allongement du temps de blocage. Le système ne redevient actif uniquement quand aucune nouvelle impulsion n'intervient pendant la durée de traitement d'une impulsion précédente.

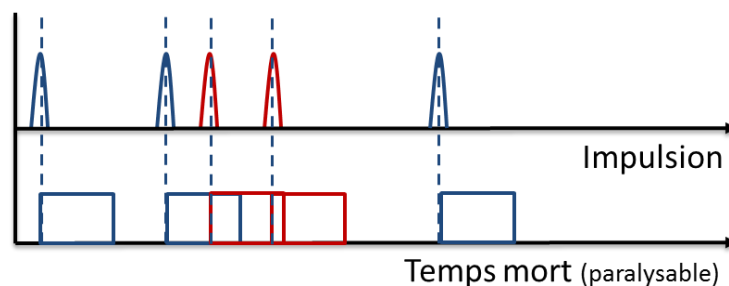


Figure 8. Pertes d'impulsions (en rouge) dans le cas du temps mort paralysable.

Cette forme de temps mort se retrouve au niveau de l'amplificateur et représente la principale source de temps mort dès que le taux de comptage devient élevé, notamment en raison du système

de rejet des empilements qui allonge le temps mort quand une deuxième impulsion arrive pendant qu'une première est traitée (les deux impulsions sont alors rejetées). Il est possible de réduire celui-ci en choisissant un temps de mise en forme du signal court, toutefois cela induit une perte de résolution en énergie.

Afin de compenser les pertes dues au temps mort, il est possible d'augmenter le temps réel pour que le temps actif corresponde au temps de mesure souhaité. Toutefois cela implique de connaître précisément ce paramètre du système et que celui-ci soit constant au cours de la mesure, ce qui n'est pas le cas en activation pulsée car le signal est très intense pendant les impulsions et décroît rapidement après chacune d'elles. Des techniques existent pour corriger de façon dynamique la perte de comptage lorsque le temps mort est variable. Le principe, initialement conçu par J. Harms [Harms67], a été développé par G. P. Westphal [Westphal77, Westphal79, Westphal82, Westphal85, Westphal07] pour permettre une acquisition « sans perte de comptage » (*Loss Free Counting*). Il est basé sur une mesure en temps réel du temps mort, à l'aide d'une horloge électronique rapide (plusieurs MHz), puis une correction du nombre de coups comptabilisés dans le spectre gamma pour chaque impulsion. L'état du système (actif ou occupé) est mesuré en permanence en comptant la fraction des impulsions de l'horloge qui parvient à transiter dans le système dans des intervalles de l'ordre de la milliseconde. A chaque impulsion physique acceptée et numérisée pendant un de ces intervalles de temps, au lieu de compter un coup dans le canal correspondant du spectre gamma, on comptabilise un nombre entier (par exemple de 1 à 255) correspondant au nombre de coups théorique s'il n'y avait pas eu de temps mort. C'est sur ce principe qu'a été intégrée l'option *Zero Dead Time* dans les outils de spectrométrie ORTEC, dont le module A<sup>SPEC</sup> 927 utilisé dans la cellule MEDINA pour ces travaux de thèse, afin de corriger de manière dynamique les éventuelles pertes par temps mort [Upp01, Keyser01, Blaaw01, Blaaw03].

Enfin, le spectre est analysé en cherchant le meilleur ajustement de chaque pic (le plus souvent gaussien) afin de soustraire le bruit de fond Compton, qui est approximé de façon linéaire ou en escalier (Galton), voir Figure 9.

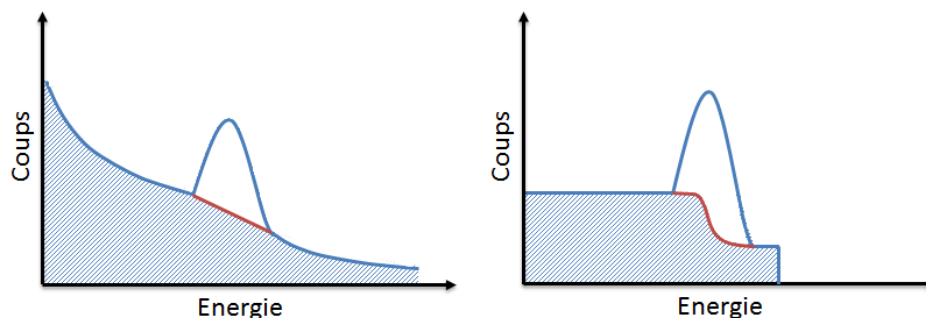


Figure 9. Principe de détermination de l'aire nette d'un pic gamma par soustraction du bruit de fond continu sous le pic.

Pour effectuer cette analyse, plusieurs logiciels sont à disposition, dont notamment :

- Gammavision, Ortec
- Gamma-W, Dr. Weistmeier
- Genie 2000, CANBERRA
- Visu gamma, Automatisme et mesure



On peut également mentionner l'outil de R&D SINBAD développé par le CEA LIST [Barat07, Rohée15], permettant un repérage, une déconvolution et une identification rapide et automatique d'un très grand nombre de raies gamma. Le principe de fonctionnement est basé sur une approche non paramétrique bayésienne, et consiste à estimer une densité de probabilité  $S$  du spectre mesuré définie comme :

$$S = aP + (1 - a)B$$

$P$  représentant la densité de probabilité associée aux raies gamma présentées dans le spectre,  $B$  celle associée au bruit de fond, et  $a$  un nombre compris entre 0 et 1. Ces trois valeurs sont déterminées aléatoirement à partir d'*a priori* spécifiques. L'*a priori* pour la densité de probabilité du bruit de fond est un arbre de Pólya qui offre la possibilité à l'utilisateur d'adapter au mieux l'estimation du bruit de fond. Celui des raies gamma du spectre est une mixture de Dirichlet dont l'avantage est de n'avoir aucune restriction quant au nombre de raies gamma identifiables. Des tests préliminaires ont été réalisés afin de comparer les performances du code SINBAD avec les logiciels du commerce comme GENIE2000 [Rohée15]. Les performances du code SINBAD, similaires à celles du logiciel GENIE2000, semblent prometteuses pour le dépouillement rapide et automatique de spectres riches en raie gamma tels que ceux obtenus en activation neutronique pulsée. En effet, cette méthode induit la détection d'une grande quantité de raies gamma dues à l'activation de l'objet analysé, d'éléments du système de mesure, de l'installation environnante. L'analyse d'un seul spectre peut alors devenir chronophage, d'où un intérêt pour toute méthode permettant d'optimiser cette phase d'analyse de spectre. C'est d'ailleurs dans cette optique que le code SINBAD a été testé sur quelques spectres mesurés au cours des travaux de thèse. Les résultats seront exposés à la fin du chapitre IV.

L'aire nette mesurée sous le pic étant proportionnelle à la masse  $m$  des éléments activés, voir les équations (1), (2) ou (3), on peut donc les quantifier via la détermination de l'efficacité de détection  $\varepsilon_\gamma$ . Celle-ci représente le nombre de coups enregistrés dans un pic du spectre gamma par photon émis dans l'objet mesuré à cette énergie, et peut se décomposer en deux termes :

- l'efficacité intrinsèque du détecteur ( $\varepsilon_{int}$ ) qui traduit le nombre de coups mesurés dans un pic donné par photon entrant d'une certaine énergie dans le détecteur. Dans le cas des détecteurs germanium, une convention consiste à l'exprimer par rapport à l'efficacité de détection d'un cristal scintillateur NaI(Tl) de 7,6 cm × 7,6 cm (3"×3"), dans le cas de la raie à 1332 keV d'une source de  $^{60}\text{Co}$  placée à 25 cm, laquelle est égale à  $1,2 \times 10^{-3}$  [Knoll10]. On parle alors « d'efficacité relative » du détecteur germanium, celle du cristal de la cellule MEDINA valant par exemple 105 %, ce qui est très élevé pour un détecteur de type n. La courbe d'efficacité intrinsèque, c'est-à-dire l'efficacité en fonction de l'énergie des rayonnements gamma incidents, peut être obtenue de manière expérimentale en mesurant des sources gamma ponctuelles (comme l'isotope  $^{152}\text{Eu}$ ) placées à une distance donnée du détecteur ;
- une fonction de transfert (FT) regroupant :
  - l'efficacité géométrique, dépendante de l'angle solide sous lequel le détecteur voit l'échantillon (distance, angle de visée, champ de vue éventuellement réduit par un collimateur),

- un terme d'atténuation par l'élément lui-même (auto-absorption), par la matrice de l'échantillon, le contenant (fût métallique, ...), et d'éventuels écrans ajoutés pour limiter le taux de comptage.

Dans quelques cas, il est possible de déterminer cette fonction de transfert de manière expérimentale (matrice bien connue, mesure d'échantillon de référence), mais est souvent déterminée par simulation Monte Carlo ou par des formules analytiques. Ces approches calculatoires ne peuvent cependant pas complètement remplacer la mesure et doivent être qualifiées par quelques mesures de références [Loche06].

## II.4. Seuil et limite de détection

Le seuil de détection (SD) permet de déterminer si un pic est significatif par rapport au bruit de fond. Il est associé au risque de fausse alarme : c'est le seuil au-delà duquel un signal peut être considéré comme dû à la présence de l'isotope associé et non au bruit, à un niveau de confiance donné. La limite de détection (LD) est quant à elle associée au risque de non détection : c'est la plus petite quantité de l'isotope recherché dont on est certain, pour un niveau de confiance donné, qu'elle donnera lieu à un signal supérieur au SD. En première approximation, pour un pic sans interférence, les valeurs de SD et LD pour des risques de fausse alarme et de non détection égaux à 2,5 % sont données par [GTN5] :

$$SD = 1,96 \times \sqrt{2 \times F(a)} = 1,96 \times \sqrt{5,04 \times R \times B} = 4,4 \times \sqrt{R \times B} \quad (4)$$

$$LD = 2 \times SD = 8,8 \times \sqrt{R \times B} \quad (5)$$

Avec

$F(a)$  : L'intégrale du bruit de fond sous le pic (coups)

$R$  : La largeur à mi-hauteur du pic (keV)

(nota :  $5,04 \times R$  permet d'intégrer 99,7 % de la surface totale du pic, supposé gaussien)

$B$  : L'amplitude moyenne du bruit de fond sous le pic (coups/keV)

## III. Les applications de l'activation neutronique

### III.1. La caractérisation élémentaire

La mesure du rayonnement gamma prompt de capture neutronique et dans certains cas de collision inélastique est une méthode permettant la caractérisation non-destructive d'éléments généralement non radioactifs, tels que les toxiques chimiques ou les métaux lourds, dans des échantillons de formes et de dimensions variées. Cette méthode, dont l'acronyme anglo-saxon est PGNAA pour *Prompt Gamma Neutron Activation Analysis* [Failey79, Gardner98, Paul00, Molnàr04a], s'utilise en irradiation continue ou pulsée, ce dernier étant celui utilisé pour cette thèse. La suite de ce paragraphe s'attache à illustrer l'utilisation de cette méthode dans divers domaines.

Dans le biomédical tout d'abord, pour contrôler la teneur en  $^{10}\text{B}$  d'échantillons biologiques dans le cadre de la thérapie contre le cancer basée sur la réaction  $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$  [Stella11, Zhang15]. Toujours dans ce domaine, l'activation neutronique pulsée est aussi étudiée pour contrôler la présence éventuelle de gadolinium dans l'organisme suite à une IRM (imagerie par résonance magnétique) [Gräfe10, Gräfe11, Mostafaei15], ou encore la présence de cadmium et de mercure [Atanackovic07].

Dans le secteur de l'environnement [Yonezawa96, Frankle97], l'activation pulsée est utilisée pour la mesure in situ de salinité [Borsaru06a], de la contamination dans des échantillons de sols [Shue96, Howel00, Shultis01], pour la détermination de la composition d'échantillons géologiques [Islam11], la mesure de sodium et de magnésium dans des échantillons de roche [Karouji08], l'analyse des éléments produits par les cheminées géothermiques des fonds océaniques [Perry02], la détection de polluants (Cd, Hg, Cl, ...) dans l'eau [Khelifi07, Idiri10, Naqvi11a, Naqvi15a, WenBao14, Yongsheng15], la caractérisation élémentaire de l'eau utilisé dans la production d'hydrocarbure [Meric11], la caractérisation de céréales [Galinha11].

Dans le domaine du spatial, elle a permis la détermination de la composition d'une météorite [Latif13], ou l'étude de la composition des sols de corps célestes (planètes, astéroïdes, lunes, ...) [Parsons11].

Dans les applications liées à la sécurité du territoire, elle a été utilisée pour détecter des explosifs et autres matières dangereuses comme les toxiques de guerre, ou les produits illicites comme les drogues [Caffrey92, Bach93, Vourvopoulos01, Perot07, Gozani07, Twomey07, Kettler13, Naqvi13a, Naqvi13b, Bergaoui14]. On notera qu'une méthode spécifique, dite de la particule associée (TPA), est mise en œuvre pour ce type d'application [Donzella07, Perot07, Perot09, Eleon10]. Celle-ci consiste à mesurer la particule alpha émise approximativement à  $180^\circ$ , avec chaque neutron de 14 MeV lors de la réaction de fusion D-T, à l'aide d'un détecteur à localisation permettant de déterminer la direction d'émission du neutron opposé ainsi que son instant d'émission et donc son temps de vol. Cette technique permet de focaliser l'inspection sur un volume d'intérêt et d'améliorer ainsi le rapport signal sur bruit.

L'activation neutronique a été également mise en œuvre pour la prospection minière [Borsaru06b, Nikitin10, Trofimczyk09], de charbon [Borsaru01, Borsaru04], de cuivre [Charbucinski03, Charbucinski04], ou encore celle de l'uranium [Dodd67, Jensen81].

Elle permet aussi la caractérisation en ligne du charbon [Dep98, Sowerby09], le contrôle des matières premières et de la qualité de fabrication du ciment [Weiss86, Oliveira97, Womble05]. Un grand nombre de travaux ont aussi été réalisés sur la caractérisation des bétons [Naqvi04a, Naqvi06a, Naqvi10a, Naqvi10b, Naqvi11b, Naqvi14, Naqvi15b], de ciment [Naqvi03a, Naqvi03b, Naqvi04b, Naqvi06b] ainsi que sur quelques échantillons liquides [Naqvi12, Naqvi13c]. D'autres études ont aussi été réalisées sur des échantillons de béton [Livingston10].

Dans le domaine de la caractérisation des déchets radioactifs qui fait l'objet de cette thèse, la mesure des rayonnements de capture a été étudiée pour corriger des effets de matrice [Baudry03, Loche06], le dosage de l'iode dans les verres [Clamond05], ainsi que la détection de toxiques chimiques [Kettler07, Ma12, Mauerhofer13, Mauerhofer14, Mauerhofer15, Havenith15, Mildenerger15, Mildenerger16, Nicol15, Nicol16a, Nicol16b]. Concernant ce dernier point, des

travaux préliminaires ont été réalisés aux USA par la compagnie Westinghouse sur les métaux lourds listés ci-dessous [Dulloo98, Dulloo99, Dulloo00, Dulloo01, Dulloo04, Gehrke97] :

- arsenic (As)
- baryum (Ba)
- cadmium (Cd)
- chrome (Cr)
- plomb (Pb)
- mercure (Hg)
- sélénium (Se)
- argent (Ag)

Dans un premier temps, des tests ont été effectués sur une cellule capable de contenir des fûts de 8 gallons, soit environ 35 L [Gehrke97, Dulloo98, Dulloo99, Dulloo00]. Ces derniers ont permis de déterminer des limites de détection du mercure, du cadmium ou encore du plomb réparti de manière homogène dans une matrice béton. L'impact d'absorbants neutronique tels que  $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$ , ou encore le chlore et le bore, a également été étudié. Suite à ces travaux préliminaires, une installation consacré à la mesure de fûts de 55 gallons, soit environ 200 L, a été construite, voir Figure 10. Il s'agit d'une cellule constituée d'un mur intérieur de 2" d'épaisseur (soit environ 5 cm) en polyéthylène afin de thermaliser les neutrons de 14 MeV émis par un générateur pulsé D-T. Ce mur intérieur est entouré d'un mur extérieur de 4" d'épaisseur (soit environ 10 cm) de graphite afin d'assurer la réflexion des neutrons vers l'intérieur de la cellule. La détection des rayonnements gamma est assurée par un détecteur germanium hyper pur coaxial de type n, d'efficacité relative 40 %.



Figure 10. Prototype de la cellule d'activation neutronique pulsée de Westinghouse [Dulloo04].

Comme on peut le voir sur la Figure 10, le fût se trouve très près du détecteur, ce qui nécessite un mécanisme de rotation et de translation afin de pouvoir effectuer une analyse complète du colis de déchets. Le principe de fonctionnement général de ce système a donné lieu à un brevet [Dulloo01]. Des tests ont été effectués sur huit fûts de boues inorganiques contenant de 0 à 120 ppm de mercure ainsi que des noyaux transuraniens. Les résultats, comparés aux analyses chimiques de ces mêmes boues, montrent que la méthode est fiable au-delà de 60 ppm de mercure pour 1h de

mesure [Dullo04]. Toutefois, on note que peu d'informations sont disponibles sur cette installation et suite aux travaux précédemment cités, aucun autre résultat ne semble avoir été présenté. On peut notamment souligner que la nécessité d'effectuer une rotation et une translation peut engendrer des temps de mesure de l'ensemble du colis très longs. De plus, la grande quantité de polyéthylène impose l'utilisation d'écrans afin de limiter le taux de comptage dû au rayonnement gamma prompt à 2,2 MeV de l'hydrogène, ce qui doit avoir un impact non négligeable sur l'efficacité de détection des rayonnements gammas émis depuis le fût. On verra en effet, dans une partie des travaux exposés dans ce mémoire, que l'hydrogène peut entraîner une émission gamma prompt significative.

Outre l'installation présentée par Westinghouse, deux autres installations dédiées à l'activation neutronique pulsée pour les colis de déchets radioactifs sont présentées dans les travaux cités, il s'agit de REGAIN et MEDINA. Ces deux cellules ont été utilisées pour les travaux présentés dans ce mémoire, et seront décrites en détail par la suite.

Le rayonnement gamma prompt n'est pas la seule information accessible lors de l'activation neutronique, certains éléments émettent un rayonnement retardé après activation. Suivant les paramètres d'irradiation et de mesure, il est aussi possible de quantifier certains éléments via ce rayonnement retardé comme la raie gamma à 6,13 MeV issue de la réaction  $^{16}\text{O}(n,p)^{16}\text{N}$  ( $T_{1/2} = 7,13\text{ s}$ ) induite par des neutrons d'énergie supérieure à 10 MeV, utilisée pour la mesure de l'oxygène dans certains travaux cités précédemment, les raies gammas à 569 keV et 1063 keV issues de la réaction  $^{208}\text{Pb}(n,2n)^{207\text{m}}\text{Pb}$  induite par des neutrons d'énergies supérieur à 7,5 MeV, utilisées pour la mesure de plomb, ou encore de nombreux autres éléments [Bach93]. Mais la mesure des rayonnements gamma retardés d'activation correspond à l'utilisation de (très) hauts flux de neutrons comme ceux générés par les réacteurs de recherche, car la sensibilité est généralement insuffisante avec les générateurs de neutrons, les sections efficaces d'activation étant le plus souvent faibles par rapport aux sections efficaces de capture radiative.

## III.2. La caractérisation des matières nucléaires

Un intérêt particulier a été porté dans ces travaux de thèse aux rayonnements gamma retardés consécutifs à la fission de l'uranium et du plutonium. En effet, cette mesure peut offrir des informations complémentaires par rapport aux méthodes de caractérisation de l'activité alpha des colis de déchets radioactifs. Les principaux émetteurs alpha de période longue présents dans les colis de déchets sont les isotopes  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ , et  $^{240}\text{Pu}$ . A priori, ils sont mesurables par spectrométrie gamma à l'aide d'un détecteur au germanium hyper pur, mais les raies du Pu peuvent être masquées en présence de produits de fission et d'activation fortement émetteurs gamma. L'isotope  $^{240}\text{Pu}$  peut alors être caractérisé par mesure neutronique passive, mais cette technique présente aussi des limitations en présence de curium ( $^{242}\text{Cm}$  et  $^{244}\text{Cm}$ ) qui masque généralement son émission. L'isotope  $^{239}\text{Pu}$  peut quant à lui être mesuré par interrogation neutronique active pulsée avec détection des neutrons prompts et retardés de fission, comme illustré sur la Figure 11 [Perot04]. Le signal des neutrons prompts donne directement accès à la masse fissile, la comparaison des contributions promptes et retardées permettant de différencier les isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$ .

La différenciation entre ces deux isotopes peut en effet se révéler importante pour la détermination de l'activité alpha car l'activité alpha spécifique de l'isotope  $^{235}\text{U}$  (en Bq/g) est près de 30 000 fois inférieure à celle de l'isotope  $^{239}\text{Pu}$ . Sans la différenciation de ces derniers, l'attribution de l'intégralité de la masse fissile mesurée à l'isotope  $^{239}\text{Pu}$  peut entraîner un sur-classement d'un

nombre significatif de colis de déchets et donc leur orientation vers une filière plus coûteuse (stockage profond par exemple).

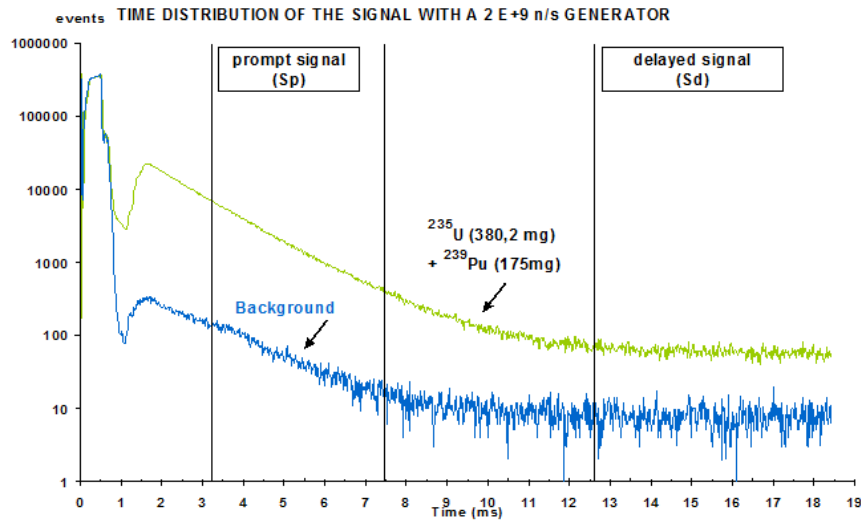


Figure 11. Principe de mesure du signal des neutrons prompt et retardés de fission [Raoux00].

Dans le cas le plus simple, où les interférences d'autres éléments tel que  $^{238}\text{U}$  sont négligeables, les masses respectives des isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$  sont alors déterminées à partir des équations suivantes [Raoux03] :

$$S_p = C_{p5} \times m(^{235}\text{U}) + C_{p9} \times m(^{239}\text{Pu}) \quad (6)$$

$$S_d = C_{d5} \times m(^{235}\text{U}) + C_{d9} \times m(^{239}\text{Pu}) \quad (7)$$

Avec  $S_p$  et  $S_d$  les signaux prompt et retardés mesurés,  $C_p$  et  $C_d$  des constantes de calibration (en  $\text{s}^{-1} \cdot \text{g}^{-1}$ ) représentant le nombre de neutrons prompts et retardés détectés par unité de masse des isotopes associés.

Une autre méthode envisageable pour la différenciation entre les isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$  est la mesure des rayonnements gamma retardés émis suite aux fissions induites lors de la décroissance bêta des produits de fission [Beddingfield98]. La production d'un isotope à la suite d'une fission peut se caractériser par le rendement cumulé qui regroupe la production de l'isotope directement induite par la fission (rendement indépendant) et celle résultant des décroissances successives d'autres produits de fission. Comme on peut le constater sur la Figure 12, représentant les rendements de production cumulés des produits de fission en fonction du nombre de masse, les fissions des isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$  ne conduisent pas à la même distribution des produits de fission. La mesure des intensités relatives des raies gamma associés à différents produits de fission de nombres de masse compris entre 80 et 130 peut ainsi fournir des indications sur l'isotope ayant fissionné,  $^{235}\text{U}$  ou  $^{239}\text{Pu}$ .

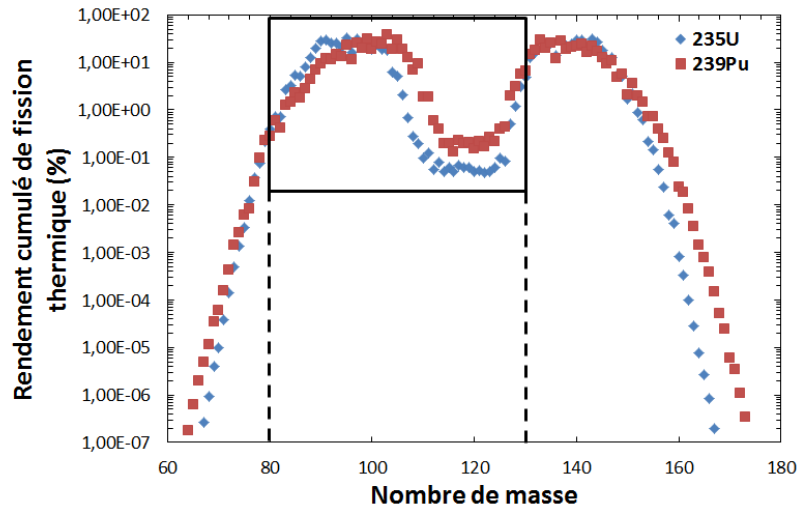


Figure 12. Rendements de production cumulés des produits de fission de l' $^{235}\text{U}$  et du  $^{239}\text{Pu}$  [JEFF05].

Les rayonnements gamma retardés de fission sont beaucoup plus abondants que les neutrons retardés (6 à 7 par fission contre seulement  $10^{-2}$ ) [Gozani09], mais le bruit de fond gamma est également plus important, en grande partie à cause de l'activation des matériaux du colis et de l'environnement de mesure. La possibilité de différencier les isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$  par la mesure du rayonnement de gamma retardé de photofission a été mise en évidence à la fin des années 80 par C.L. Hollas [Hollas86], la réaction étant ici engendrée par des photons de haute énergie (plus de 6 MeV, seuil de la réaction de photofission). L'exploitation du rayonnement gamma retardé de photofission a ensuite été étudiée à travers de nombreux travaux [Gmar99, Carrel06, Carrel07, Carrel10a, Carrel10b, Carrel11a, Kavouras12, Wen13]. On notera qu'une partie des études sur la mesure des rayonnements gamma retardés de photofission porte également sur d'autres actinides tels  $^{238}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}$  [Boyer06, Iyengar13, Dighe14, Kavouras14]. A partir de la fin des années 90, la fission induite par des neutrons est utilisée pour mesurer la différence entre les rayonnements gamma retardés de fission des isotopes  $^{235}\text{U}$  et du  $^{239}\text{Pu}$  [Beddingfield98, Clamond05, Carrel06, Carrel07, Carrel10b, Mars08, Sari12, Chivers11]. Dans certains cas, la mesure du rayonnement gamma retardé de fission n'est utilisée que pour détecter la matière fissile, sans distinction des parts U et Pu, spécialement dans le domaine de la sécurité [Norman04, Slaughter05, Slaughter07, Gmar06, Rennhofer11, Stevenson11]. D'autres études se concentrent sur la mesure de l'uranium, notamment pour déterminer l'enrichissement [Firestone05]. Certaines applications sont quant à elles destinées à la caractérisation de combustible usé [Campbell10, Campbell11]. Une majeure partie des études citées ici portent sur des échantillons simples de matière fissile (pure ou mélangée), et seulement quelques-unes considèrent la matière fissile comme contenue dans une matrice telle que les containers de transport pour les applications dans le domaine de la sécurité, ou encore les colis de déchets radioactifs. Par exemple, les performances de la méthode de différenciation par mesure du rayonnement gamma retardé de fission induite par des neutrons ont été étudiées sur un colis maquette de 118 L contenant une matrice d'acétate d'éthylène [Carrel07]. Les mesures effectuées avec une dizaine de grammes d'uranium et /ou de plutonium fortement enrichis au centre du fût, ou légèrement excentré, permettent de retrouver les masses attendues aux incertitudes de mesures près.

## IV. Outils utilisés pour la thèse

### IV.1. Moyens expérimentaux

Une partie des résultats exploités dans ce travail de thèse a été obtenue lors de campagnes de mesures dans la cellule d'irradiation REGAIN (Recherche des Gamma d'Activation et Irradiation Neutronique) au CEA Cadarache [Clamond05, Ma12]. Cette cellule, représentée sur la Figure 13, était faite de blocs de graphite maintenus en place grâce à une structure en aluminium. Suite à la cessation d'activité de l'installation nucléaire COMIR où elle se trouvait, la cellule REGAIN n'est plus opérationnelle actuellement.

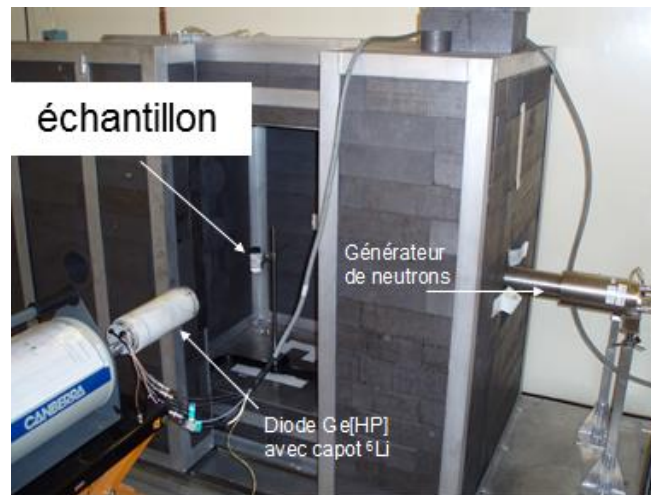


Figure 13. Cellule REGAIN (CEA Cadarache) [Clamond05].

L'irradiation y était assurée par un générateur de neutrons type GENIE 16 de SODERN, d'une émission maximale de  $2 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$  sur  $4\pi$  stéradian par fusion D-T avec une énergie de 14 MeV. La réaction de fusion D-D étant également possible, il existe aussi une faible composante d'émission neutronique à 2,5 MeV. Ce type de générateur offre la possibilité d'émettre les neutrons de manière pulsée ou continue. Les neutrons émis sont thermalisés dans le graphite afin de favoriser les réactions de capture ou de fission dans la cavité pouvant accueillir un fût de 118 L. La détection du rayonnement gamma induit est assurée par un détecteur germanium hyper pur coaxial de type n, d'efficacité relative 30 %, placé sur un axe perpendiculaire à celui du générateur (une autre position dans la face opposée au générateur était également possible dans REGAIN). Afin de limiter l'activation du cristal de germanium par les neutrons thermiques, un écran d'oxyde de lithium enrichi en  $^6\text{Li}$  (à 99 %) entourait le détecteur. Le traitement du signal était assuré via une électronique analogique CANBERRA constituée d'une alimentation haute tension 5000 V, d'un préamplificateur CANBERRA 2101 avec remise à zéro par transistor, d'un amplificateur CANBERRA modèle 2024, et d'un codeur analogique numérique CANBERRA modèle 8715.

Ce dispositif, utilisé pour la mesure du rayonnement gamma prompt, ou retardé de courte période radioactive (quelques millisecondes), était complété d'un spectromètre bas bruit de fond pour la détection des éléments à demi-vie plus longue (de quelques secondes à quelques heures). Ce dernier, représenté sur la Figure 14, était localisé dans une pièce annexe à la salle d'irradiation et comportait une enceinte blindée en plomb à bas bruit de fond avec un détecteur germanium hyper pur coaxial de type p, d'efficacité relative 25 %.





Figure 14. Dispositif de spectrométrie gamma à bas bruit de fond [Clamond05].

Contrairement à la cellule REGAIN, ce dispositif ne possédait qu'un volume de 18 L, mais permettait de réduire le bruit de fond entre 0 et 2 MeV d'au moins un facteur 50, principalement à cause de l'activation des éléments de structure dans REGAIN, dont notamment les armatures en aluminium (Figure 13). De nombreux produits d'activation émetteurs gamma de haute énergie ont ainsi été observés dans la cellule REGAIN après irradiation, comme  $^{28}\text{Al}$  ( $T_{1/2} = 2,24$  min ;  $E_{\gamma} = 1779$  keV),  $^{24}\text{Na}$  ( $T_{1/2} = 14,96$  h ;  $E_{\gamma} = 1369$  keV et 2754 keV),  $^{27}\text{Mg}$  ( $T_{1/2} = 9,46$  min ;  $E_{\gamma} = 844$  keV et 1015 keV), ou  $^{56}\text{Mn}$  ( $T_{1/2} = 2,58$  h ;  $E_{\gamma} = 844$  keV, 1810 keV, 2113 keV).

Le Laboratoire de Mesures Nucléaires du CEA Cadarache possède une autre cellule de mesure neutronique active, PROMETHEE VI, dont le schéma est représenté en Figure 15. Cette dernière, dédiée à la mesure des neutrons prompts et retardés de fission, a été utilisée ponctuellement pour la mesure de rayonnement gamma retardé de fission en disposant un détecteur germanium au niveau de la porte de la cellule, perpendiculairement au générateur de neutrons [Carrel07].

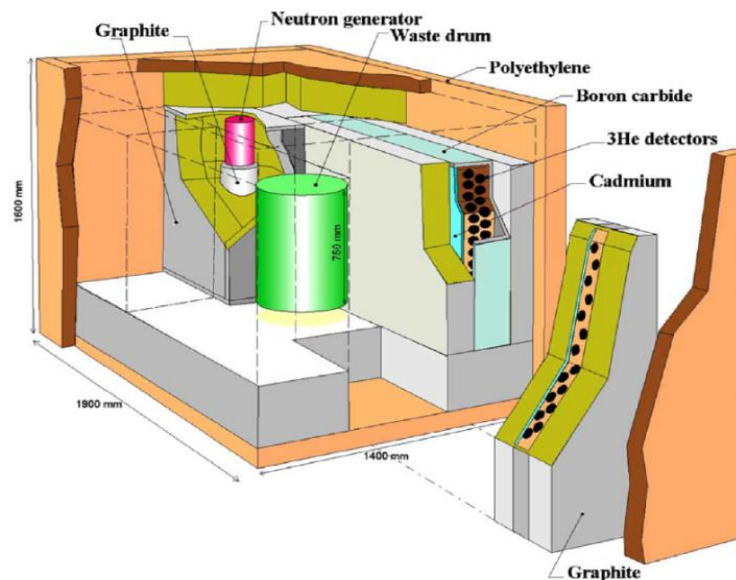


Figure 15. Schéma de la cellule PROMETHEE [Raoux03].

Néanmoins, cette cellule n'a pas été conçue pour la mesure gamma et c'est donc dans le cadre d'une collaboration avec l'Institut pour l'Énergie et la recherche sur le Climat, Gestion des déchets radioactifs et la sûreté des réacteurs du centre de recherche de Juliers (IEK-6, Forschungszentrum Jülich, Allemagne), que le Laboratoire de Mesures Nucléaires continue ses études sur le

rayonnement gamma prompt et retardé d'activation neutronique. Débutée en 2009, cette collaboration s'est construite autour de la détection de toxiques chimiques dans les déchets radioactifs dans la cellule MEDINA (*Multi Element Determination based on Instrumental Neutron Activation*), capable de contenir des fûts jusqu'à 225 L dans sa cavité interne de 80 cm × 80 cm × 120 cm [Mauerhofer14, Havenith15].



Figure 16. Cellule MEDINA (extérieure et intérieure) [Mauerhofer14].

Tout comme REGAIN, la cellule MEDINA est un assemblage de blocs de graphite, mais sans éléments de structure en aluminium pour limiter le bruit de fond dû à l'activation. Afin de maintenir les blocs constituant le toit de graphite au-dessus de la cellule, des plaques de fibre de carbone (CFRP : *Carbon-Fiber Reinforced Polymers*) ont été utilisées, amenant cependant une nouvelle source de bruit de fond gamma prompt car relativement riches en éléments à forte section efficace de capture radiative (hydrogène, chlore). Les compositions détaillées du graphite et du CFRP sont indiquées dans le Tableau 2.

Tableau 2. Composition du graphite et de la fibre de carbone (CFRP) employés dans MEDINA [Mauerhofer14].

Élément	Graphite	CFRP
Hydrogène	45 ± 21 ppm	2,94 ± 0,05 %
Bore	1,86 ± 1,39 ppm	1,37 ± 0,15 ppm
Azote	∅	4,86 ± 0,06 %
Carbone	99,913 ± 0,001 %	92,0 ± 0,3 %
Aluminium	405 ± 49 ppm	∅
Souffre	115 ± 7 ppm	∅
Chlore	2,0 ± 1,0 ppm	0,18 ± 0,10 %
Calcium	195 ± 7 ppm	∅
Titane	41 ± 37 ppm	∅
Vanadium	3,50 ± 3,50 ppm	∅
Fer	50 ± 14 ppm	∅
Samarium	73 ± 52 ppb	∅
Gadolinium	221 ± 221 ppb	∅

Les dimensions externes importantes de MEDINA (160 cm × 200 cm × 155 cm) lui confèrent un bon pouvoir de thermalisation mais aussi un poids important de près de 6,5 tonnes. Dans la chambre d'irradiation, le fût repose sur une table tournante en fibre de carbone. L'insertion des fûts se fait par

le toit amovible (bouchon) qu'une grue permet de retirer. L'irradiation est assurée à l'aide d'un générateur de neutron de 14 MeV de type GENIE16 (SODERN) positionné horizontalement dans le mur en graphite de la cellule à une altitude correspondant à la demi hauteur d'un fût de 200 L. La cible de tritium du générateur, point d'émission des neutrons, se trouve à une distance de 55 cm du centre du fût. La détection des rayonnements gamma est assurée par un détecteur germanium hyper pur coaxial de type n et d'efficacité relative 104 % (CANBERRA). Ce dernier est positionné dans le mur de la cellule, perpendiculairement au générateur de neutrons, à une distance de 105 cm du centre du fût, et également à mi-hauteur de celui-ci. Afin d'éviter d'activer les isotopes du germanium par les neutrons thermiques, un écran à base de lithium enrichi en  $^6\text{Li}$  (à 95 %) entoure le capot du détecteur. Cet écran est composé de plaques de 3 mm d'épaisseur de fluorure de lithium LiF, à l'exception de la face du détecteur visant la chambre d'irradiation, pour laquelle du carbonate de lithium  $\text{Li}_2\text{CO}_3$ , de 3 mm d'épaisseur également, a été utilisé. Toutes ces plaques sont fixées sur un support en aluminium entourant le capot du détecteur. Le signal issu du préamplificateur à remise à zéro par transistor (CANBERRA modèle 2101) est ensuite mis en forme par un amplificateur (CANBERRA modèle 2022) en mode intégrateur à porte (pour la correction du déficit balistique sur les gros cristaux de germanium [Gilmore08]), puis par un codeur et analyseur multi canaux (ORTEC modèle A<sup>spec</sup> 927). Les spectres gamma sont finalement enregistrés avec le logiciel GammaVision-32 (ORTEC), l'analyse des spectres étant réalisée à partir du logiciel Gamma-W (Westmeir GmbH), voire SINBAD [Barat07, Rohée15].

## IV.2. Outils de simulation

Dans de nombreuses références citées précédemment, ainsi que dans les travaux qui seront exposés ici, le code de transport de particules MCNP [MCNPX240, MCNP5] est utilisé. Ce code permet, à partir d'une géométrie définie, d'évaluer les flux de particules (neutron, photon, électron) ou le dépôt d'énergie dans un détecteur gamma en réalisant le transport de celles-ci depuis une source par la méthode de Monte Carlo. Il est aussi possible d'estimer des taux de réaction en convoluant le flux avec les bibliothèques de données de sections efficaces rattachées à MCNP. Dans certains cas, il est aussi possible de générer l'émission de rayonnements suivant une réaction donnée, à condition que leurs taux de production soient disponibles dans les bibliothèques rattachées, pour aussi transporter ces rayonnements secondaires (par exemple les rayonnements gamma prompts de capture radiative) vers le détecteur notamment. Les résultats de simulation sont obtenus via l'utilisation d'estimateurs « scores », ou *tally* dans la terminologie MCNP, relatifs à différentes grandeurs :

- F1 courant à travers une surface,
- F2 flux à travers une surface,
- F4 flux à travers une cellule,
- F5 flux en un point (détecteur point),
- F6 énergie déposée,
- F7 énergie déposée par fission,
- F8 histogramme des dépôts d'énergie dans un détecteur (spectre gamma),

Au cours des travaux présentés dans ce mémoire, de multiples simulations ont été réalisées à partir des modèles MCNP de REGAIN et MEDINA, respectivement représentés sur les Figure 17 et Figure 18.

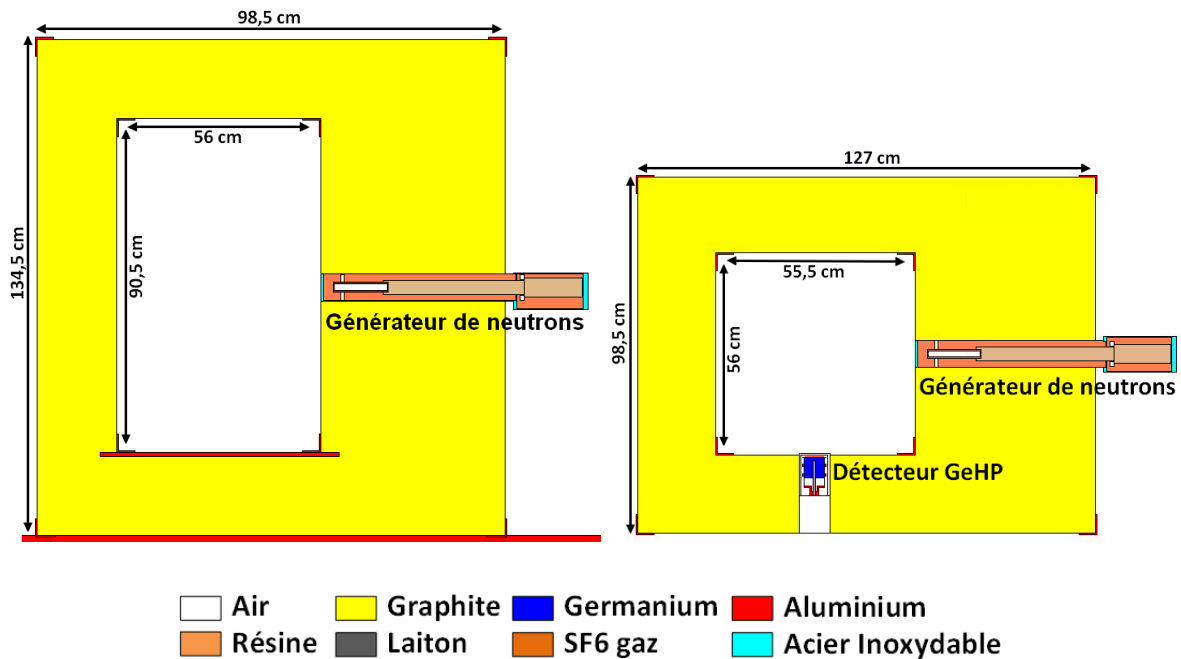


Figure 17. Modèle MCNP de la cellule REGAIN (coupe verticale à gauche et horizontale à droite).

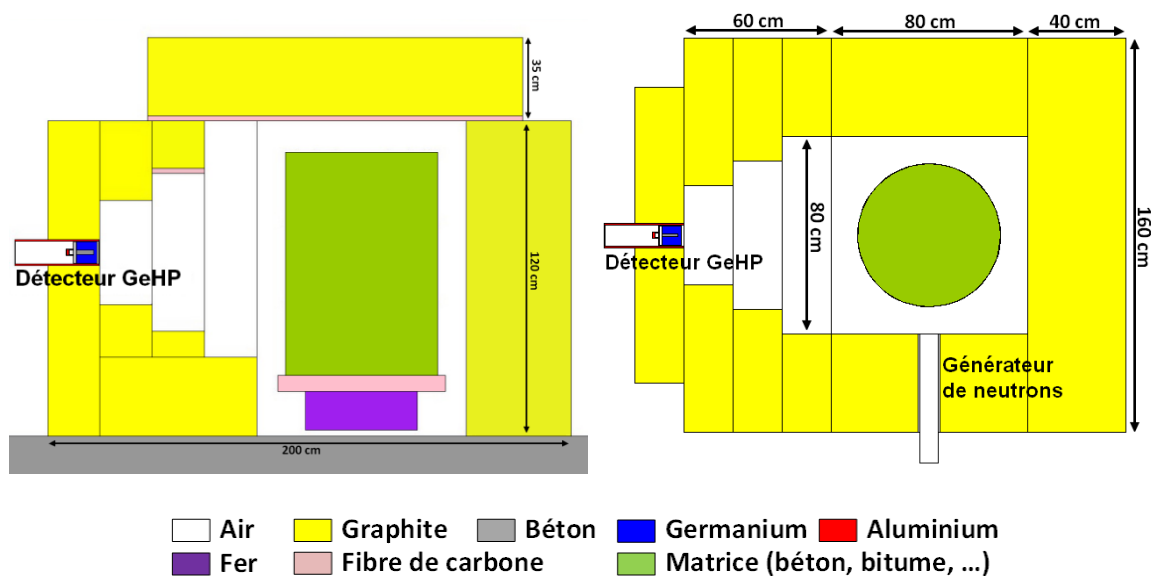


Figure 18. Modèle MCNP de la cellule MEDINA (coupe verticale à gauche et horizontale à droite).

Ce code existe en de multiples versions, ici MCNPX 2.4.0 [MCNPX240] au CEA Cadarache et MCNP5 [MCNP5] au FZJ auront servi à réaliser les simulations des rayonnements gamma prompts d'activation neutronique. On notera qu'aucune de ces deux versions ne permet de simuler directement la production des rayonnements gamma retardés. Cette fonctionnalité a par la suite été implémentée dans les versions plus récentes telles que MCNPX 2.6.0 [Durkee09, MCNPX260] ou MCNP6 [MCNP6]. Nous exposerons dans les chapitres 2 et 3 comment les signaux correspondants ont donc été simulés ici en plusieurs étapes de calcul.



# Chapitre II : Validation du modèle MCNP de la cellule MEDINA

---

## I. Introduction

Ce chapitre est dédié à la validation du modèle MCNPX de la cellule MEDINA, étape essentielle pour s'assurer de la vraisemblance des résultats de simulation par rapport aux résultats attendus expérimentalement.

La cellule MEDINA décrite précédemment permet de détecter des éléments non-radioactifs (toxiques chimiques) dans des fûts de 200 L. Etant donné que le béton est un matériau souvent utilisé pour l'enrobage des déchets radioactifs, les performances de la cellule MEDINA ont été étudiées expérimentalement sur un fût béton de 200 L [Mauerhofer14]. Cette étude a démontré la capacité à déterminer les concentrations des éléments contenus dans le béton par la mesure du rayonnement de capture des neutrons thermiques. Toutefois, les études de performances ne sont pas toujours facilement réalisables de manière expérimentale, ce qui est notamment le cas de l'étude réalisée pour les colis de déchets d'enrobés bitumineux, très radioactifs, au chapitre III, et un modèle numérique peut s'avérer très utile. De la même façon, les études d'optimisation impliquant des modifications lourdes de l'installation comme celles abordées dans le chapitre IV, ne peuvent être directement réalisées sans étude d'impact préalable. Un modèle MCNP de la cellule a donc été réalisé afin d'assister les programmes expérimentaux.

Avant les travaux développés ici [Nicol15], une première validation du modèle numérique de la cellule MEDINA a été effectuée [Mauerhofer13], tout d'abord axée sur le modèle du détecteur germanium, et consistant à comparer la mesure de sources ponctuelles ( $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{152}\text{Eu}$ ) au résultat obtenu par simulation sans irradiation neutronique. La validation du modèle du détecteur construit à partir des indications du constructeur, a conduit à des résultats mesurés et calculés cohérents à  $\pm 5\%$  sur la plage en énergie de 121 keV à 1408 keV. Cette même référence rapporte aussi une première validation de l'ensemble du modèle de MEDINA grâce à l'activation neutronique d'un échantillon de NaCl, révélant un accroissement régulier du rapport MCNP/mesure sur une plus large gamme en énergie (0,5 – 9 MeV) correspondant aux rayonnements de capture du chlore. Initialement, cet effet a été imputé en partie à la description géométrique du détecteur et à la modélisation de l'angle d'incidence des rayonnements de capture dans le cristal GeHP [Mauerhofer13], mais il est apparu ensuite que la dépendance du rapport MCNP/mesure était en fait principalement causée par l'utilisation du spectre de variance associée aux mesures, qui par erreur a été utilisé au lieu du spectre de mesure [ORTEC13]. Au-delà de ce biais systématique, ces premières mesures ne pouvaient néanmoins être reproduites qu'à un facteur deux près par la simulation. Une telle précision était alors suffisante pour commencer les études de performance de l'activation neutronique, mais elle devait être améliorée. Les travaux de thèse présentés dans ce chapitre ont donc consisté à reprendre la comparaison expérience-calcul sur une série de mesures de petits échantillons d'éléments purs sous forme métalliques, ou de composés chimiques sous forme de poudre. Les configurations expérimentales correspondantes ont été reproduites à l'aide du modèle MCNP de la cellule et les spectres gamma d'activation neutronique pulsé ont été estimés par

simulation Monte Carlo à partir de différentes bases de données pour contrôler l'impact éventuel de celles-ci sur les résultats.

Dans ce chapitre, nous présenterons dans un premier temps les configurations expérimentales ainsi que les résultats de mesure. Ensuite, nous développerons les différentes méthodes permettant de simuler le spectre de gamma de capture neutronique. Finalement les résultats obtenus à l'aide d'une de ces méthodes sont comparés aux mesures en considérant quatre bases de données différentes.

## II. Mesures d'échantillons simples

Lors d'une campagne de mesure effectuée en 2012 [Havenith15], sept échantillons de composés chimiques sous forme de poudre, ou d'éléments purs sous forme métallique, ont été irradiés dans la cellule MEDINA afin de mesurer le rayonnement gamma prompt de capture associé à certains isotopes représentant des éléments toxiques. Les caractéristiques de ces échantillons sont résumées dans le Tableau 3.

**Tableau 3. Caractéristiques physiques (h : hauteur, l : épaisseur, L : largeur, r : rayon,  $\rho$  : densité) et section efficace macroscopique de capture radiative thermique ( $\Sigma_{th}$ ) des différents échantillons.**

Echantillon	Géométrie	Masse (g)	Volume (cm <sup>3</sup> )	$\rho$ (g·cm <sup>-3</sup> )	$\Sigma_{th}$ (cm <sup>-1</sup> )
<b>Sr(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub></b> (poudre)	1 Boite (h=8 cm, l=8 cm, L=8 cm)	948,6	512	1,86	$2,96 \times 10^{-3}$
<b>SeO<sub>2</sub></b> (poudre)	2 Boites (h=9 cm, l=6 cm, L=12 cm)	1000	648	1,54	$3,35 \times 10^{-2}$
<b>NaCl</b> (poudre)	1 Boite (h=10 cm, l=8 cm, L=8 cm)	900	640	1,41	$2,47 \times 10^{-1}$
<b>Cu</b> (métal)	1 Cylindre (h=11 cm, r = 1,9 cm)	1125,4	126	8,92	$2,94 \times 10^{-1}$
<b>Ta</b> (métal)	1 Cylindre (h=10 cm, r =1,5 cm)	1181,6	71	16,6	1,17
<b>Al</b> (métal)	Complexe (voir Fig. 1)	1200	444	2,7	$1,38 \times 10^{-2}$
<b>Be</b> (métal)	2 Cylindres percés (h=16 cm, r =10 cm)	7291	3941	1,85	$1,24 \times 10^{-3}$

Les configurations expérimentales sont illustrées sur la Figure 19. Chaque échantillon est placé à 21 cm du détecteur (distance bord à bord) afin d'augmenter l'efficacité de détection, et des blocs de graphite sont utilisés comme support de manière à ce que l'échantillon se trouve à la hauteur du détecteur. On notera que pour de raisons de sécurité vis-à-vis de la toxicité du béryllium, cet échantillon a été enveloppé dans un plastique pour l'expérience. La géométrie particulière de ce dernier est toutefois visible en Figure 19h.

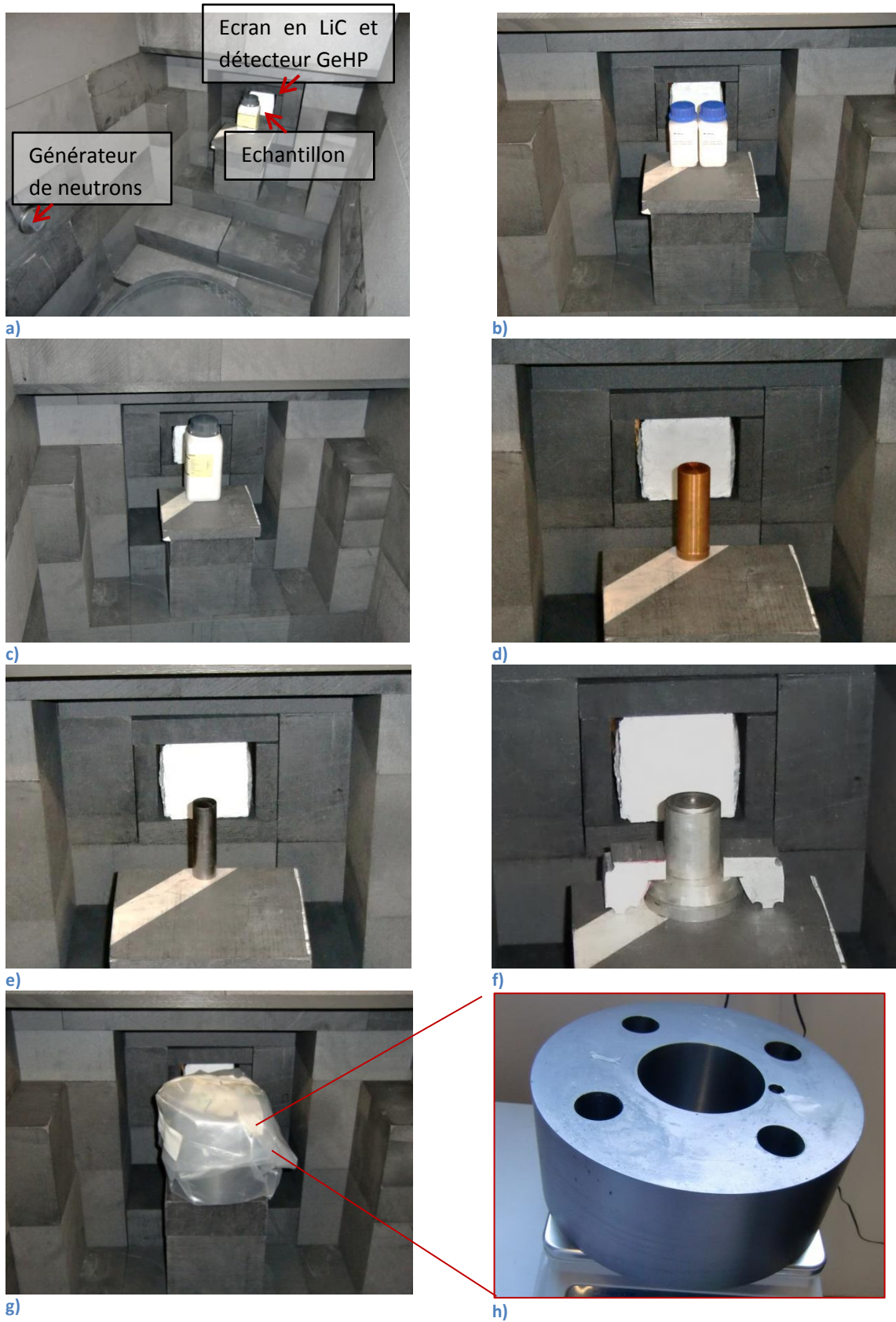


Figure 19. Configurations expérimentales d'irradiation et mesure des différents échantillons placés dans MEDINA: a)  $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ ; b)  $\text{SeO}_2$ ; c)  $\text{NaCl}$ ; d)  $\text{Cu}$ ; e)  $\text{Ta}$ ; f)  $\text{Al}$ ; g)  $\text{Be}$  et h) géométrie de l'une des deux pièces cylindriques de  $\text{Be}$ .



Chaque échantillon est soumis à une irradiation pulsée pendant 2000 s. La durée des impulsions neutroniques est fixée à 50  $\mu\text{s}$ , avec une période de répétition de 1 ms comme illustré en Figure 20. La mesure des spectres gamma est réalisée entre chaque impulsion, en introduisant un délai de 20  $\mu\text{s}$  après l'impulsion afin d'assurer l'absence d'émission de rayonnement gamma prompts induits par des neutrons de haute énergie.

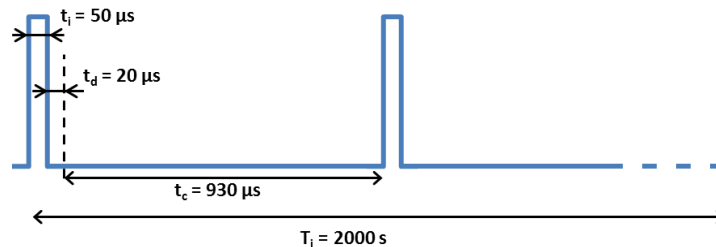


Figure 20. Chronogramme montrant des impulsions neutroniques de 50  $\mu\text{s}$  ( $t_i$ ), suivies par un temps d'attente de 20  $\mu\text{s}$  ( $t_d$ ) et une fenêtre de mesure de 930  $\mu\text{s}$  ( $t_c$ ). Cette séquence de durée 1 ms est répétée pendant un temps total d'irradiation de 2000 s ( $T_i$ ).

La tension du générateur de neutron est fixée à 85 kV, et le courant à 40  $\mu\text{A}$ , résultant en une émission neutronique moyenne de l'ordre de  $(7,18 \pm 0,93) \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ . Cette valeur a été estimée par la comparaison de mesures expérimentales des raies gamma de capture du fer dans le cas d'un fût vide de 200 L dans MEDINA, et de simulations MCNP [Mauerhofer12, Havenith15]. L'acquisition des spectres est effectuée en mode Zero Dead Time (ZDT) du logiciel GammaVision-32 (ORTEC), corrigeant ainsi les pertes par temps mort. Le temps total de comptage est alors égal au nombre d'impulsions multiplié par le temps de comptage  $t_c$ , soit 1860 s pour tous les échantillons. Des parties de spectres comprenant des raies gamma d'intérêts pour chaque élément sont représentées sur la Figure 21.

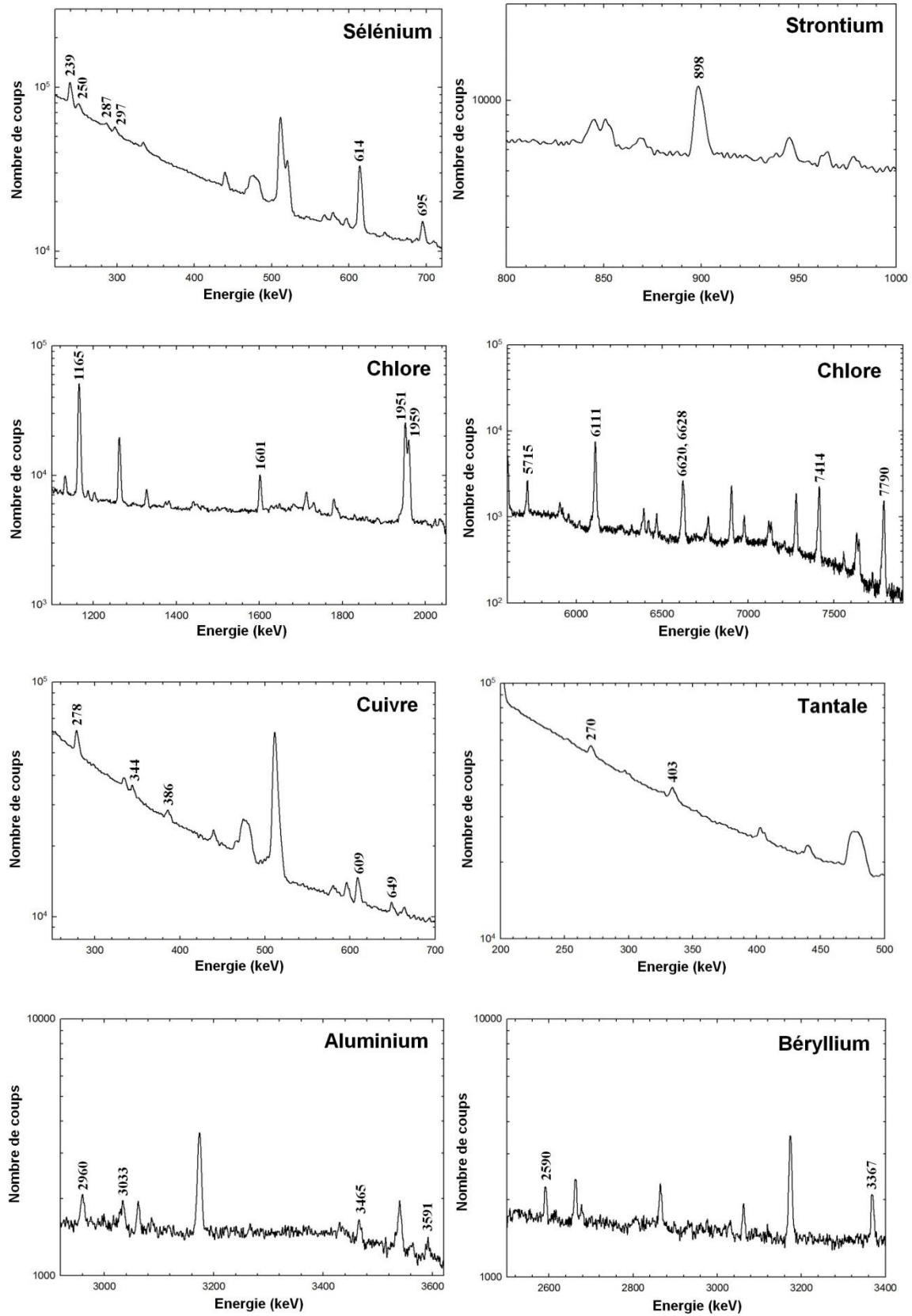


Figure 21. Zones des spectres gamma d'irradiation neutronique pulsée dans lesquelles sont indiquées les énergies des principales raies de capture pour chacun des échantillons.

Afin de vérifier la présence ou non d'interférences avec le bruit de fond de la cellule, une mesure a également été effectuée cellule vide. Une identification complète des raies gamma du bruit de fond est donnée en référence [Mauerhofer14]. Pour la suite, nous nous sommes focalisés sur les raies gamma ne présentant aucune interférence. Dans les cas particuliers des échantillons d'aluminium et de chlore, comme illustré sur les parties du spectre de bruit de fond représentées en Figure 22, la présence d'aluminium constituant le capot du détecteur, ou de chlore dans la fibre de carbone constituant le toit de la cellule, induit une interférence sur chacune des raies significatives de ces deux échantillons.

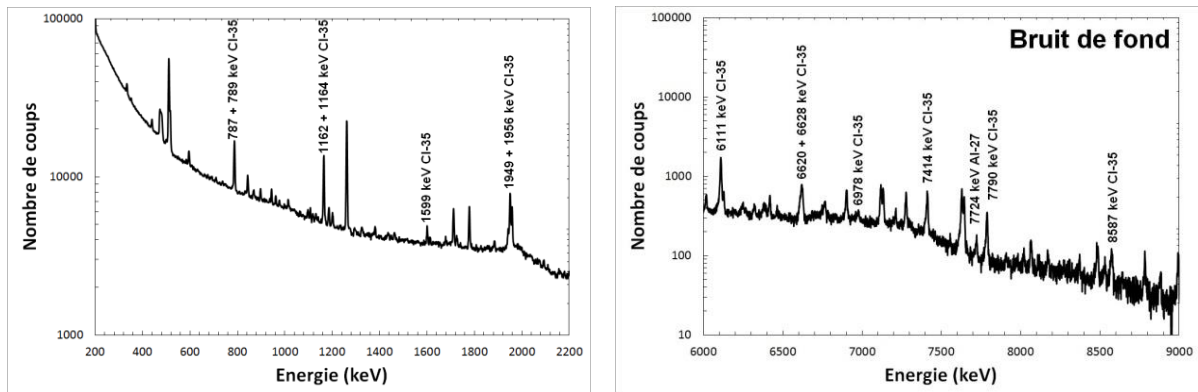


Figure 22. Zones du spectre du bruit de fond, mesuré cellule vide, présentant des raies gamma promptes du  $^{35}\text{Cl}$  et  $^{27}\text{Al}$ .

Les surfaces des raies gamma de capture sont extraites à l'aide du logiciel Gamma-W (Westmeier GmbH), en soustrayant les aires nettes mesurées sur le spectre de bruit de fond pour les isotopes  $^{35}\text{Cl}$  et  $^{27}\text{Al}$ . On notera que cette soustraction est valide car la présence de l'échantillon, de petite taille par rapport à la cellule, influence peu le flux de neutron dans la chambre d'irradiation. Cette hypothèse a été vérifiée par comparaison des principales raies gamma propres aux matériaux de la cellule, présentes dans chacun des spectres :

- la raie gamma prompte de capture de l'hydrogène à 2,223 MeV,
- les raies gamma promptes de capture du carbone à 3,683 et 4,945 MeV,
- les deux raies gamma retardées à 140 keV et 198 keV, provenant majoritairement des réactions (n,2n) induites par les neutrons rapides respectivement sur les isotopes  $^{76}\text{Ge}$  et  $^{72}\text{Ge}$ , conduisant aux états métastables  $^{75\text{m}}\text{Ge}$  ( $T_{1/2} = 47,7$  s) et  $^{71\text{m}}\text{Ge}$  ( $T_{1/2} = 20,4$  ms). Ces deux raies gamma d'activation du germanium serviront également de moniteur pour le flux de neutrons rapides dans le chapitre IV sur l'optimisation de la cellule MEDINA.

Le Tableau 4 regroupe les valeurs des surfaces nettes de ces différentes raies gamma.

**Tableau 4. Aires nettes des principales raies du bruit de fond pour chacune des mesures.**

<b>Energie (keV)</b>	140	198	2223	3683	4945
<b>Echantillon</b>	( <sup>75m</sup> Ge)	( <sup>71m</sup> Ge)	( <sup>1</sup> H)	( <sup>12</sup> C)	( <sup>12</sup> C)
BdF (sans échantillon)	256965	239775	161665	45860	84375
SeO <sub>2</sub>	252720	241620	134090	44335	83200
Sr(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	234085	236850	140320	46430	88885
NaCl	226080	233660	131965	43325	85760
Cu	234045	239285	126375	45355	85540
Ta	233934	233700	125540	45635	86600
Al	233170	239110	127970	46610	88260
Be	224595	231820	144795	46610	87990

Concernant les variations de la raie de l'hydrogène, l'utilisation d'un support en bloc graphite pour les échantillons (voir Figure 19) écrante une partie de l'émission de rayonnement gamma de capture de l'hydrogène contenu dans la fibre de carbone constituant la table tournante. Ces blocs sont absents de la mesure de bruit de fond. De plus l'utilisation de boîtes pour les échantillons de poudres de SeO<sub>2</sub>, Sr(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, NaCl, ou de sac plastique pour le béryllium introduit une quantité d'hydrogène supplémentaire contribuant en partie au signal à 2,223 MeV. Les variations relativement limitées des intensités des autres raies gamma du bruit de fond répertoriées dans le Tableau 4 (10 à 20 %), émises en différents points de la cellule, et notamment au niveau du germanium qui est proche des échantillons, confirment l'absence d'impact significatif des échantillons sur le flux de neutron dans la cellule MEDINA.

Les aires nettes des raies gamma promptes spécifiques aux échantillons sont listées dans le Tableau 5. Certaines raies gamma sont très proches en énergie les unes des autres (*e.g.* 786 keV et 787 keV, 1162 keV et 1164 keV pour l'échantillon de NaCl), et la résolution du détecteur (LTMH de 3,15 keV à 100 keV jusque 12,54 keV à 9000 keV) ne permet pas de les séparer. Les aires nettes correspondantes incluent donc les 2 raies gamma.

Tableau 5. Aires nettes, et incertitudes statistiques associées, des principales raies gamma de capture des échantillons.

<b>Elément</b>	<b>Al</b>							
<b>Energie (keV)</b>	2960	3033	3465	3591	4133	7724		
<b>Aire nette</b>	2865	2510	1650	1110	1400	2350		
<b><math>\sigma</math> Aire nette</b>	11 %	12 %	16 %	21 %	17 %	7 %		
<b>Elément</b>	<b>Be</b>				<b>Cl</b>			
<b>Energie (keV)</b>	853	2590	3367	6809	786 & 787	1132	1162 & 1164	1325
<b>Aire nette</b>	4790	2900	4070	3400	189980	10850	174600	6225
<b><math>\sigma</math> Aire nette</b>	16 %	10 %	11 %	6 %	2 %	15 %	3 %	17 %
<b>Elément</b>	<b>Cl</b>							
<b>Energie (keV)</b>	1599	1949 & 1956	2675	2864	3059	3822	4980	5715
<b>Aire nette</b>	18270	143445	6340	21640	11030	4580	7850	10410
<b><math>\sigma</math> Aire nette</b>	8 %	3 %	11 %	6 %	7 %	14 %	10 %	4 %
<b>Elément</b>	<b>Cl</b>						<b>Cu</b>	
<b>Energie (keV)</b>	6110	6625	6982	7419	7802	8587	278	344,6
<b>Aire nette</b>	47370	19160	3630	13915	9990	2705	42280	9990
<b><math>\sigma</math> Aire nette</b>	3 %	4 %	7 %	3 %	3 %	6 %	10 %	13 %
<b>Elément</b>	<b>Cu</b>							
<b>Energie (keV)</b>	385,8	580	608,9	648,8	663	6989	7176	7253
<b>Aire nette</b>	9235	3240	10340	3250	2735	935	730	1160
<b><math>\sigma</math> Aire nette</b>	15 %	20 %	9 %	15 %	16 %	13 %	19 %	23 %
<b>Elément</b>	<b>Cu</b>		<b>Se</b>					
<b>Energie (keV)</b>	7308	7921	238	250	286	298	578	614
<b>Aire nette</b>	2340	7400	101200	26820	13170	14960	10150	83550
<b><math>\sigma</math> Aire nette</b>	7 %	3 %	10 %	12 %	11 %	12 %	7 %	5 %
<b>Elément</b>	<b>Se</b>							
<b>Energie (keV)</b>	695	756	818	1297	1307	1995	7181	9198
<b>Aire nette</b>	15700	7040	6910	7740	10570	2230	1390	610
<b><math>\sigma</math> Aire nette</b>	7 %	9 %	11 %	7 %	7 %	17 %	13 %	10 %
<b>Elément</b>	<b>Sr</b>		<b>Ta</b>					
<b>Energie (keV)</b>	898	1836	270	403				
<b>Aire nette</b>	15470	17070	12190	8920				
<b><math>\sigma</math> Aire nette</b>	10 %	6 %	8 %	14 %				

Ces mesures serviront de base à la comparaison expérience-calcul visant à la validation du modèle MCNP de la cellule MEDINA décrite dans la suite de ce chapitre.

## III. Simulations MCNPX

### III.1. Modèle numérique

Les configurations expérimentales décrites précédemment ont ensuite été modélisées avec MCNP en utilisant le modèle représenté en Figure 23 où l'on peut voir un échantillon, ainsi que les délimitations d'un fût de 225 L positionnés dans la cellule MEDINA (mais on notera l'absence de fût dans les simulations réalisées dans ce chapitre). La source de neutrons est définie comme ponctuelle, située à 15 cm du bord de la chambre d'irradiation et émettant sous  $4\pi$  stéradian des neutrons de 14 MeV. Afin de prendre en compte les réactions D-D se produisant également dans le générateur de neutron, 5 % des neutrons sont émis avec une énergie de 2,5 MeV. Cette valeur a été fixée sur la base des données SODERN, indiquant que la part de neutrons de 2,5 MeV ne dépasse pas 5 %. Une carte temporelle a été ajoutée à l'élément source MCNP afin d'émettre les neutrons uniquement pendant une durée de 50  $\mu$ s, correspondant à l'irradiation pulsée décrite en Figure 20. Le spectre gamma est obtenu en utilisant l'estimateur F8 permettant de calculer le dépôt d'énergie dans la cellule correspondante au cristal de germanium. Toutefois, l'utilisation de cet estimateur n'est pas fiable avec le transport neutronique qui est traité par MCNP de façon non analogue à la réalité [MCNP5]. Ceci est mentionné au travers d'un message d'avertissement (« warning ») lors des simulations. Les simulations doivent donc être réalisées en deux étapes, la première correspondant au calcul de la source de gamma de capture qui sera utilisée pour la seconde étape consistant à transporter uniquement des photons ("mode p" dans MCNP) pour pouvoir utiliser l'estimateur F8. Les calculs MCNP ont été effectués avec la version MCNPX2.4.0 [MCNPX240] en utilisant la bibliothèque de données ENDF/B-VII.0 [Chadwick06].

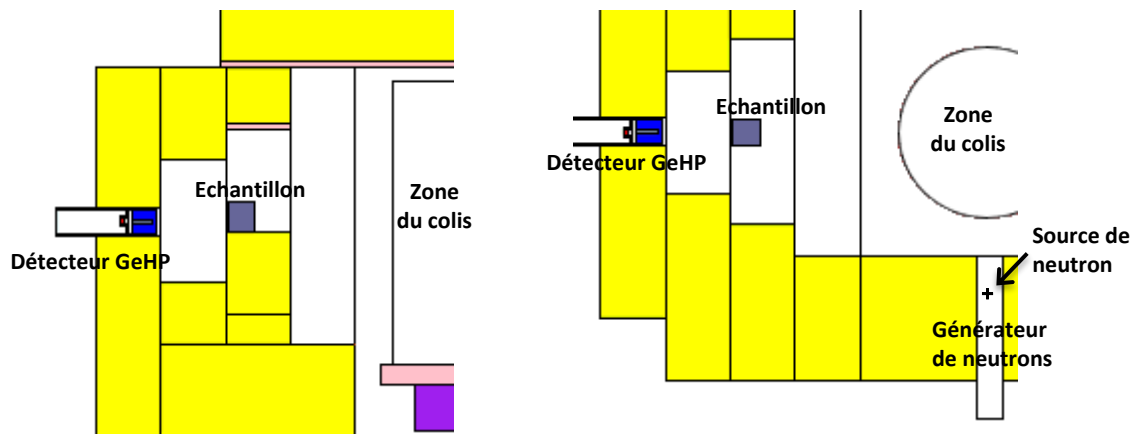


Figure 23. Modèle MCNP de la cellule MEDINA dans le cas de l'irradiation de petits échantillons (coupe verticale à gauche, et horizontale à droite).

Pour l'étape d'estimation du dépôt d'énergie dans le cristal de germanium (F8), le détecteur est modélisé selon la description technique du fournisseur, en considérant que le trou à l'intérieur du cristal coaxial est en cuivre pour simuler le doigt froid, voir Figure 24. Il s'agit du modèle validé en utilisant des sources gamma de calibration ( $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{152}\text{Eu}$ ) [Mauerhofer13].

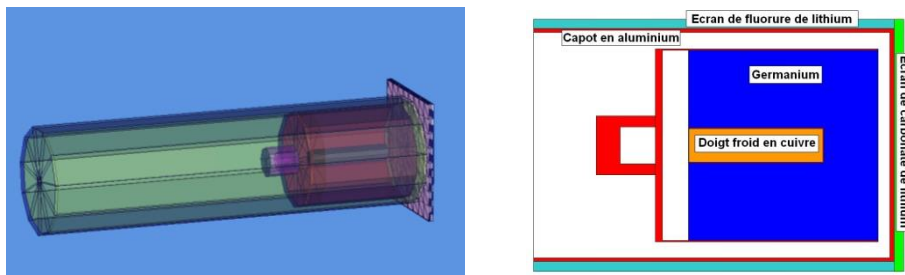


Figure 24. Modèle MCNP du détecteur GeHP (vue 3D à gauche et coupe horizontale à droite).

Comme exposé dans les paragraphes suivants, deux approches différentes ont été étudiées pour modéliser l'émission du rayonnement gamma de capture, chacune basée sur une impulsion de neutrons du générateur d'une durée de  $50 \mu\text{s}$ . Afin de prendre en compte la contribution de ces impulsions à la formation du flux de neutrons thermiques, le calcul des estimateurs MCNP est effectué dans la première étape sur un temps de 10 ms, correspondant à 10 cycles d'irradiation. En effet, le temps de vie des neutrons thermiques (Die Away Time) dans le graphite de la cellule, estimé expérimentalement de 2 à 5 ms [Mildenberger15], est plus long que la période d'irradiation (1 ms). Chaque impulsion introduit donc une nouvelle population de neutrons thermiques avant la disparition totale de celle induite par l'impulsion précédente. Ce phénomène est illustré en Figure 25 où l'on peut observer l'allure du flux de neutron thermique pendant les premières périodes d'irradiation. La décroissance exponentielle du flux thermique induit par une seule impulsion du générateur de neutron est représentée en pointillés. On constate alors que le flux de neutrons thermiques engendré par ce type d'irradiation est un cumul des différentes composantes provenant des impulsions précédentes.

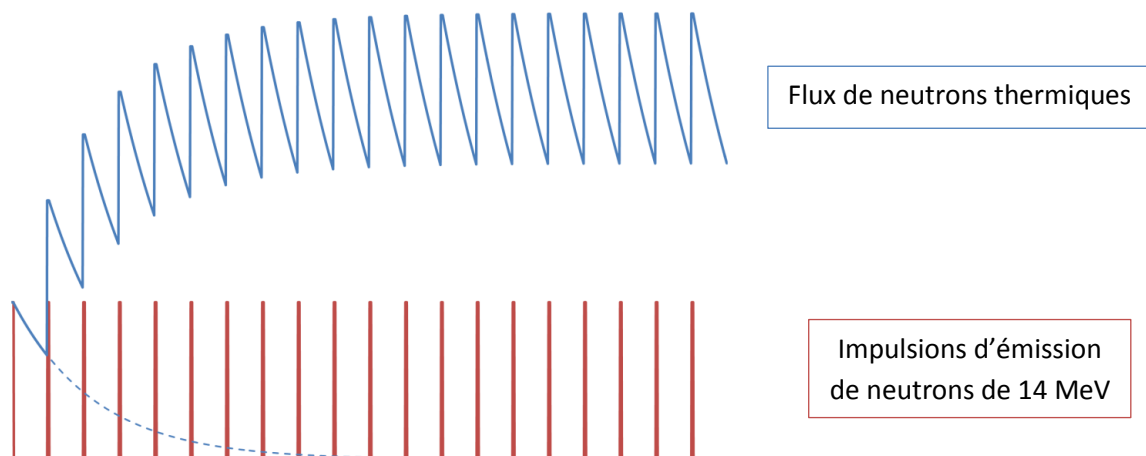


Figure 25. Allure du flux thermique induit par une irradiation neutronique pulsée correspondant au chronogramme représenté Figure 20.

On notera également qu'aucune acquisition n'est faite pendant les impulsions de neutrons ( $50 \mu\text{s}$ ) et les  $20 \mu\text{s}$  de délais qui suivent l'impulsion, l'estimateur MCNP utilisé pour déterminer la source gamma a donc été décomposé de manière à exclure les rayonnements gamma de capture produits pendant ces périodes.

### III.2. Première approche basée sur l'estimateur de flux gamma F5

Une première étape consiste à estimer le flux gamma induit par la capture neutronique en un point situé juste devant le détecteur en utilisant l'estimateur F5 (« détecteur point » de MCNP et illustré en Figure 26) décomposé en énergie et en temps. Cette distribution du flux gamma en fonction de l'énergie contient l'ensemble des raies gamma induites par les neutrons dont les données de production figurent dans les bases de données utilisées par MCNP. Ces raies sont non seulement produites dans l'échantillon, mais aussi dans d'autres éléments de la cellule MEDINA (C, H, ...). Après avoir sélectionné la plage en temps correspondant aux fenêtres d'acquisition, cette distribution de flux est ensuite réémise à travers toute la surface d'entrée du détecteur, perpendiculairement à celle-ci, comme illustré sur la Figure 26.

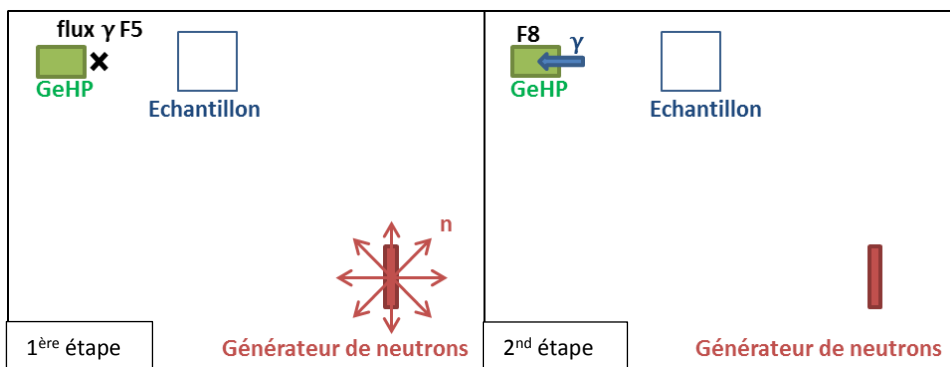


Figure 26. Illustration de l'approche F5 puis F8.

L'approximation d'une incidence normale au détecteur a été testée pour l'échantillon de NaCl et comparée à une émission depuis l'échantillon dans l'angle solide formé avec le détecteur. Cette comparaison, présentée dans [Mauerhofer13] et reprise dans la Figure 27 (points noirs vs. carrés) montre que l'angle d'incidence a un impact significatif sur le résultat. En effet, l'échantillon se trouve trop près du détecteur pour supposer que l'émission gamma issue de celui-ci arrive parallèlement à l'axe du détecteur. Malheureusement, l'approche F5 seule ne permet d'obtenir aucune information sur la direction des photons.

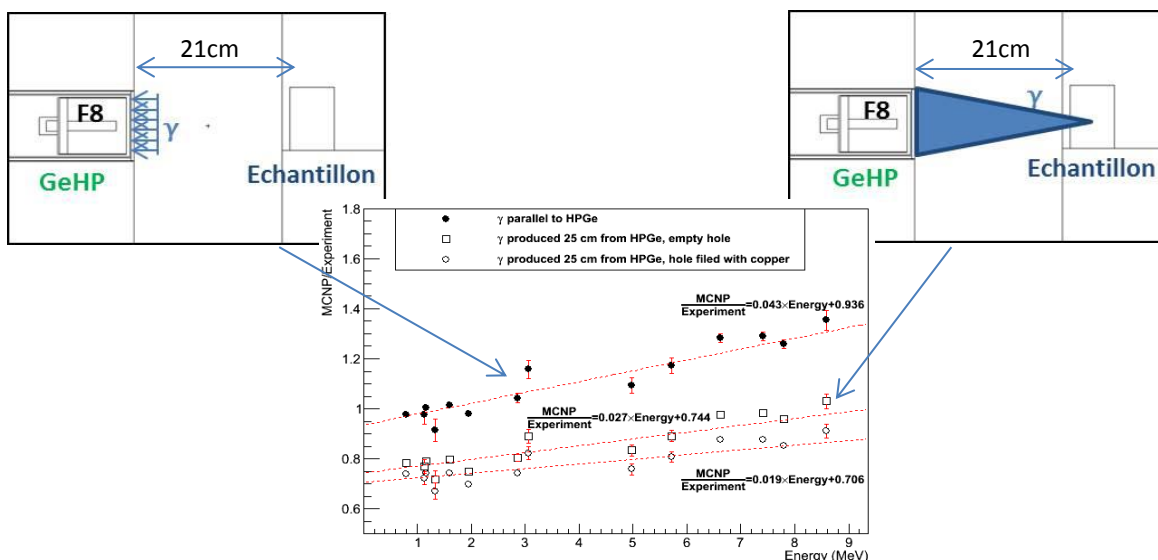


Figure 27. Rapport MCNP/Expérience pour différentes configurations en utilisant la méthode F5 puis F8.



L'utilisation de l'estimateur de flux F5 laisse aussi l'utilisateur tributaire des bases de données utilisées par MCNP qui parfois comportent des lacunes, comme l'absence d'émission de gamma de capture radiative pour certains éléments. Par exemple, pour des éléments tels que le sélénium, le strontium ou le tantale, le résultat ne montre aucune raie gamma de capture caractéristique.

Enfin, comme le flux retourné par l'estimateur F5 contient l'ensemble des rayonnements gamma de capture produit dans toute la cellule, une autre simulation sans échantillons est donc nécessaire afin de soustraire la composante du bruit de fond actif comme pratiqué pour les mesures expérimentales. Ceci est notamment le cas pour l'échantillon de chlorure de sodium où le chlore contenu dans les parties de la cellule en fibre de carbone contribue au signal. Bien que l'effet soit moindre, l'identification de la composante ne provenant pas de l'échantillon est aussi nécessaire dans le cas de l'aluminium (capot et autres structures en aluminium entourant le détecteur).

### III.3. Seconde approche basée sur estimateur de flux neutron F4

Afin de s'affranchir des limitations de la méthode basée sur l'estimateur F5 mentionnées précédemment, une seconde approche a été testée, consistant dans un premier temps à estimer le taux de capture radiative de l'élément d'intérêt présent dans l'échantillon en utilisant l'estimateur de flux neutronique F4 convolué avec la section efficace de capture grâce à la carte FM4 (Figure 28) pour l'ensemble des énergies des neutrons. La seconde étape consiste alors à réémettre les rayonnements gamma de capture depuis l'échantillon, proportionnellement au taux de capture précédemment calculé, et d'estimer le spectre gamma via l'estimateur F8 comme illustré sur la Figure 28. L'intensité du rayonnement gamma de capture émis par l'échantillon est obtenue en multipliant le taux de capture par les intensités des raies gamma de capture émises en se référant aux bases de données nucléaires telles que [Lone81, Reedy02, AEIA07, Capgam13].

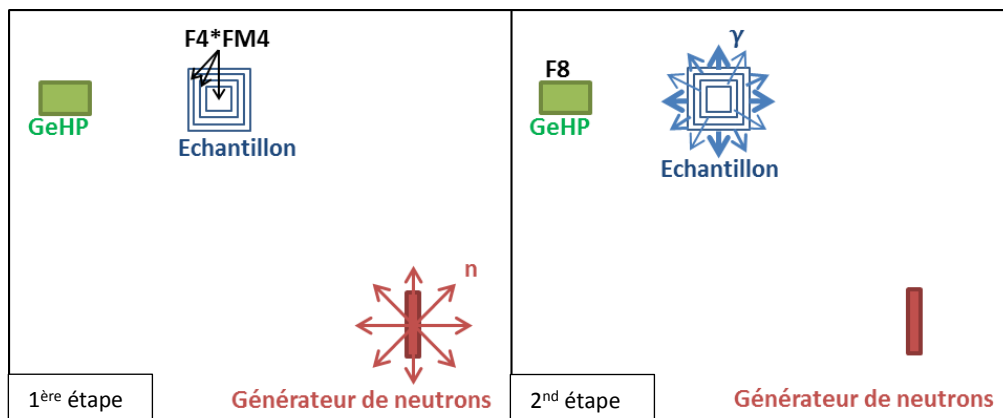



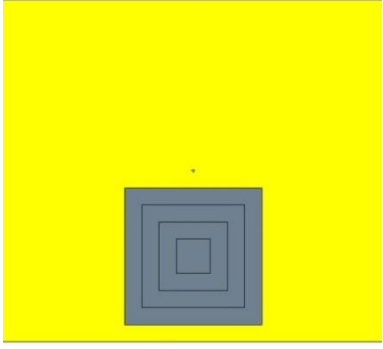
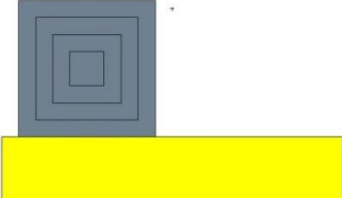
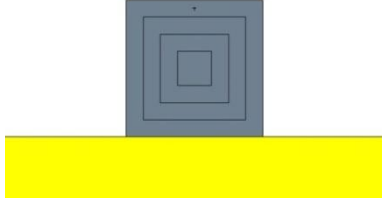
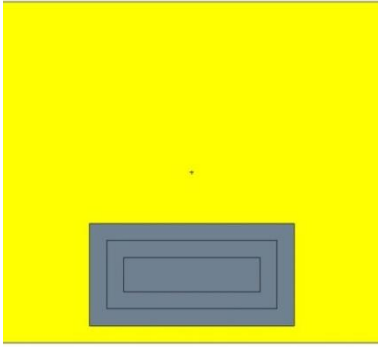
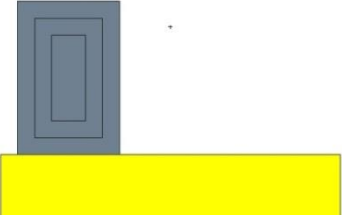
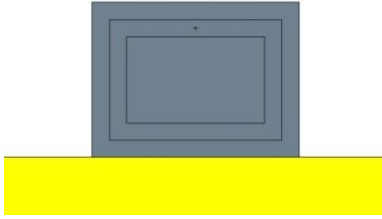
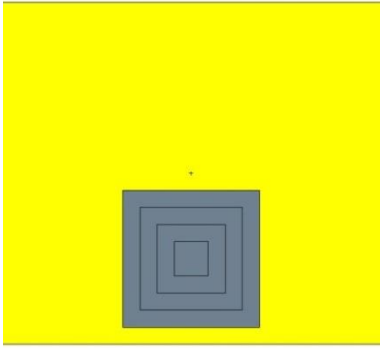
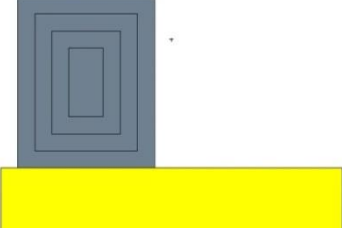
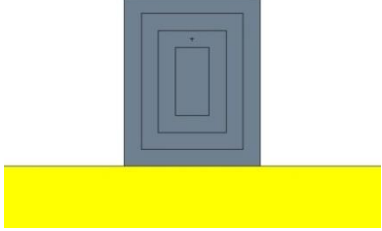
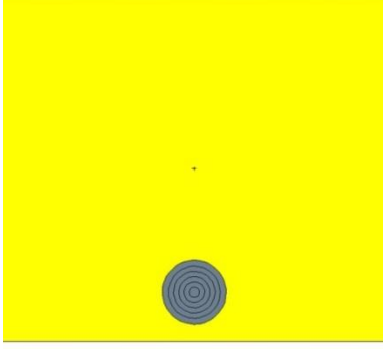
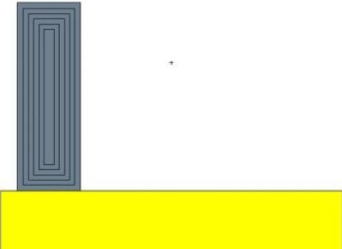
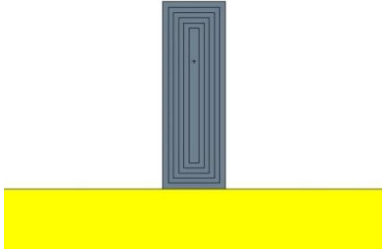


Figure 28. Illustration de l'approche F4 puis F8.

La principale limitation de cette méthode est liée aux effets de matrice neutroniques et gamma. En effet, même si les compositions des différents échantillons sont homogènes, il est possible que le taux de réaction ne le soit pas à cause du phénomène d'autoprotection neutronique. En particulier pour les éléments à forte section efficace d'absorption neutronique, les neutrons interagissent principalement à la surface de l'échantillon et pénètrent peu à l'intérieur de celui-ci, résultant en une émission gamma principalement depuis la surface. Cette information est perdue par l'utilisation de l'estimateur F4 si celui-ci est calculé sur le volume total de l'échantillon. L'ensemble des rayonnements gamma émis depuis celui-ci est alors distribué sur la totalité de son volume et non principalement en surface. Ceci induit un biais significatif sur la détection gamma si l'échantillon présente également une forte densité et donc une forte auto-atténuation gamma. Afin de prendre en compte ce phénomène, au lieu de considérer l'échantillon comme une seule cellule, celui-ci est divisé en segments concentriques depuis sa surface jusqu'au centre (Figure 29), l'estimation du taux de capture se faisant alors dans chaque sous cellule. La géométrie complexe de l'échantillon d'aluminium (voir Figure 19) est décrite comme un assemblage de deux cylindres décomposés en quatre segments, et quatre parallélépipèdes décomposés en trois segments (voir Figure 29). L'échantillon de béryllium, de par la présence de trous en divers endroits, a été décomposé en trois cylindres de même hauteur. De plus, comme ce dernier est volumineux, il a été divisé en quatre secteurs angulaires (face et opposée au détecteur et deux côtés latéraux). Les échantillons de tantale et de cuivre sont décomposés en segments concentriques de 3 mm d'épaisseur. Les autres échantillons NaCl, SeO<sub>2</sub>, Sr(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> sont quant à eux uniformément décomposés en trois ou quatre segments concentriques.

		
	<p data-bbox="719 315 858 367"><math>\text{Sr}(\text{NO}_3)_2</math></p> 	
	<p data-bbox="740 730 839 781"><math>\text{SeO}_2</math></p> 	
	<p data-bbox="740 1144 839 1196"><math>\text{NaCl}</math></p> 	
	<p data-bbox="756 1559 823 1610"><math>\text{Cu}</math></p> 	

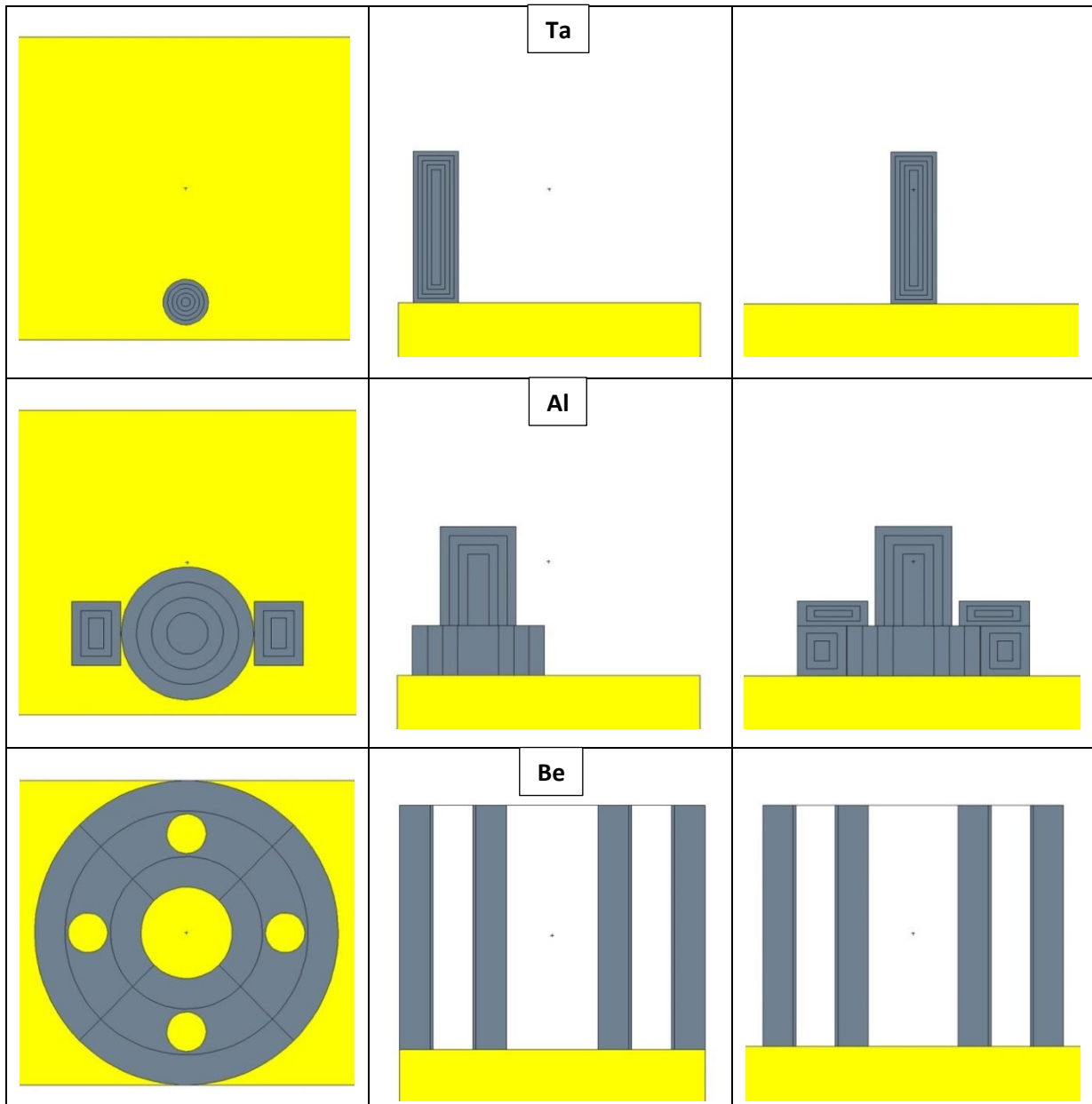


Figure 29. Segmentation (selon les 3 plans de l'espace) des différents échantillons pour le calcul MCNPX des taux de capture neutronique.

Pour la deuxième étape de calcul (réponse du détecteur GeHP), une source gamma isotrope est définie dans chacune des sous cellules  $k$ , avec comme intensité le produit  $R_c(k) \times I_{E\gamma}$ , où  $R_c(k)$  représente le taux de capture radiative de la sous cellule  $k$  par neutron source (résultat de calcul de la première étape, Figure 28) et  $I_{E\gamma}$  l'intensité de la raie gamma considérée. Le taux de capture est calculé à partir de l'équation :

$$R_c(k) = (F4 * FM4)_k \times V_k \quad (8)$$

Où

$V_k$  : volume de la sous cellule  $k$  ( $\text{cm}^3$ )

$(F4 * FM4)_k$  : taux de réaction volumique (en  $\text{cm}^{-3}$  par neutron source) calculé par MCNP pour la sous cellule  $k$ .

Pour cette étude, nous avons comparé les intensités de rayonnement de gamma de capture données dans les bases de données de Lone [Lone81], Reedy and Frankle [Reedy02], CapGam [Capgam13], ainsi que celles déduites des valeurs de section efficace partielle de production gamma de la base de données de l'AIEA sur les raies gamma d'activation neutronique [AIEA07]. L'utilisation de toutes ces bibliothèques permet d'estimer l'incertitude liée aux données nucléaires et aussi d'observer leur évolution au cours du temps.

Même si la base de données de Reedy et Frankle est limitée aux éléments avec un numéro atomique  $Z \leq 30$  plus quelques isotopes additionnels de Ge, Sm, Gd, Ta et W, cette dernière a quand même été retenue car, comme mentionné dans [AIEA07], une grande attention a été portée quant à cette évaluation pour son application dans divers domaines. Concernant les données de CapGam, ces dernières sont issues du fichier Evaluated Nuclear Structure Data File [ENSDF15] complété avec la liste eXperimental Unevaluated Nuclear Data List [XUNDL16]. Pour les isotopes considérés dans cette étude, les données de CapGam proviennent toutes de ENSDF. La base de l'AIEA inclut principalement les données mesurées au Budapest Research Reactor, ainsi que quelques autres sources complémentaires [AIEA07]. Comme indiqué précédemment, cette base de données fournit des valeurs de  $\sigma_v^Z$  (section efficace partiel de production gamma) qui doivent être divisées par l'abondance naturelle de l'isotope et sa section efficace de capture radiative afin d'obtenir les intensités gamma.

Les bases de données de Lone et de Reedy & Frankle fournissent une émission gamma directement pour l'élément naturel, alors que celles de l'AIEA et CapGam donnent les données pour chaque isotope, ce qui nécessite une simulation plus complexe pour chaque isotope. Par ailleurs, ces deux dernières bases de données fournissent les incertitudes associées aux intensités gamma et il est alors possible d'en tenir compte dans l'incertitude globale de simulation.

Cette méthode F4-F8 présente donc plusieurs avantages par rapport à la méthode F5-F8 : elle prend en compte l'angle d'incidence du rayonnement gamma sur le détecteur et l'utilisation de bases de données extérieures permet non seulement d'éviter les problèmes de manque de données dans certaines bibliothèques utilisées par MCNP, mais aussi d'intégrer les incertitudes associées à celles-ci. Bien que les émissions gamma promptes de capture soient directement produites dans MCNP pour certains isotopes (Al, Be, Cl et Cu), ce qui permettrait d'utiliser la méthode F5-F8 pour ces échantillons, le choix a donc été fait de présenter tous les résultats obtenus avec la même méthode F4-F8 dans le paragraphe suivant.

## IV. Comparaison entre simulations et mesures expérimentales

Les résultats de l'estimateur F8 étant normalisés au nombre de particules source MCNP, pour pouvoir les comparer aux résultats expérimentaux il est donc nécessaire de les multiplier par l'émission neutronique du générateur,  $EN_{G16}^{MEDINA}$ , estimée à  $(7,18 \pm 0,93) \times 10^7 \text{ s}^{-1}$  [Havenith15], et par le temps de total d'irradiation ( $T_i = 2000 \text{ s}$ ). Les acquisitions ayant été faites sous le mode Zero Dead Time, le temps mort a été corrigé de manière dynamique pendant la mesure et la comparaison

peut donc se faire directement à partir des aires nettes mesurées. Cette comparaison est réalisée en estimant le rapport entre la valeur simulée et la valeur mesurée pour toutes les raies gamma de chaque échantillon [Nicol15]. Ce rapport est calculé suivant l'équation (9) et représenté dans un premier temps sur la Figure 30 en considérant les intensités gamma indiquées dans la base de données de Lone. Les barres d'erreurs prennent en compte ici les incertitudes de mesure ainsi que la statistique de simulation. Les incertitudes sur les intensités des raies gamma n'étant pas mentionnées dans la base de données de Lone et la précision statistique des simulations étant très bonne ( $\approx 1\%$ ), l'incertitude sur les rapports est principalement due à la précision statistique de comptage.

$$\frac{MCNPX}{Mesure} = \frac{F8 \times T_i \times EN_{G16}^{MEDINA}}{S_{net}} \quad (9)$$

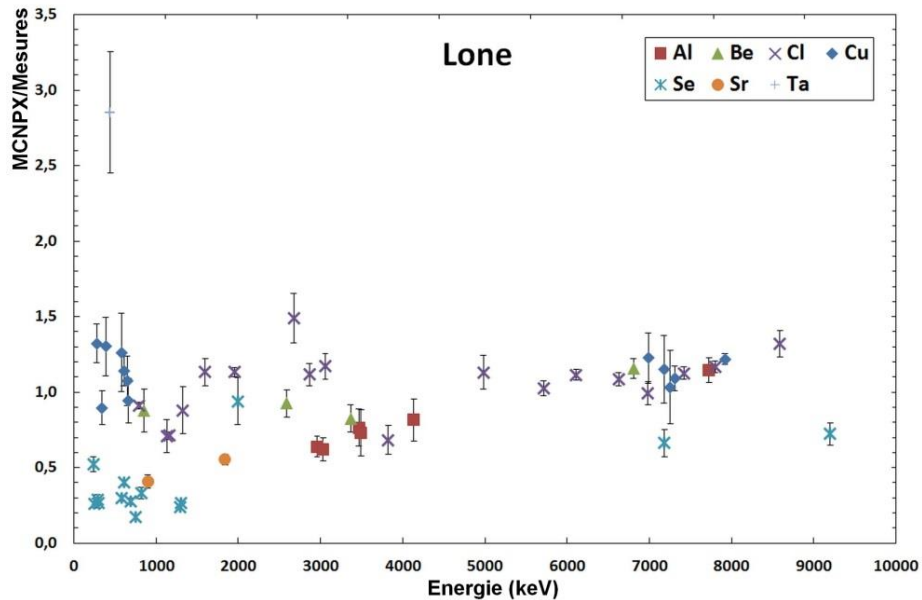


Figure 30. Rapport des aires nettes calculées avec MCNPX et mesurées pour chaque raie gamma de capture, en utilisant les intensités de la base de données de Lone [Lone81].

Des écarts significatifs sont observés dans le cas des isotopes du sélénium et du strontium pour lesquelles les valeurs simulées sous-estiment les valeurs mesurées de 30 % à 70 %, ainsi que pour le cas du tantale pour lequel la valeur est surestimée de près d'un facteur 3. On notera également que, pour ce dernier, seule une des deux principales raies gamma de capture est répertoriée dans la base de données de Lone. A cause de ces différences importantes, probablement dû à l'ancienneté (1981) et donc aux incertitudes sur les données de cette bibliothèque, ces raies ont été exclues pour la suite de l'analyse. Bien que des écarts importants soient observés, notamment à basse énergie, on remarque une assez bonne concordance entre simulation et mesure pour le chlore, le cuivre, l'aluminium et le béryllium (rapport moyen  $MNCPX/Mesure = 1,02$ ,  $\sigma = 0,21$ ).

Afin de contrôler l'impact des données utilisées sur l'accord expérience-calcul, la base de données de Reedy & Frankle (2002) a été choisie dans un second temps. Bien que ne présentant aucune donnée pour le sélénium et le strontium, nous avons souhaité étudier l'évolution des données concernant les autres isotopes mesurés. On notera également que, comme la bibliothèque de Lone, cette dernière donne une émission gamma directement pour les éléments naturels et toujours sans mention des incertitudes associées.

Les rapports MCNPX/Mesure calculés à partir de cette nouvelle base de données sont représentés en Figure 31. Bien que la simulation pour le tantale surestime toujours nettement la mesure, les résultats obtenus montrent une dispersion des écarts moindre que précédemment, notamment pour les raies de basse énergie. Nous obtenons une valeur moyenne des rapports MCNPX/Mesure (sans le tantale) égale à 0,96 avec un écart type de 0,12.

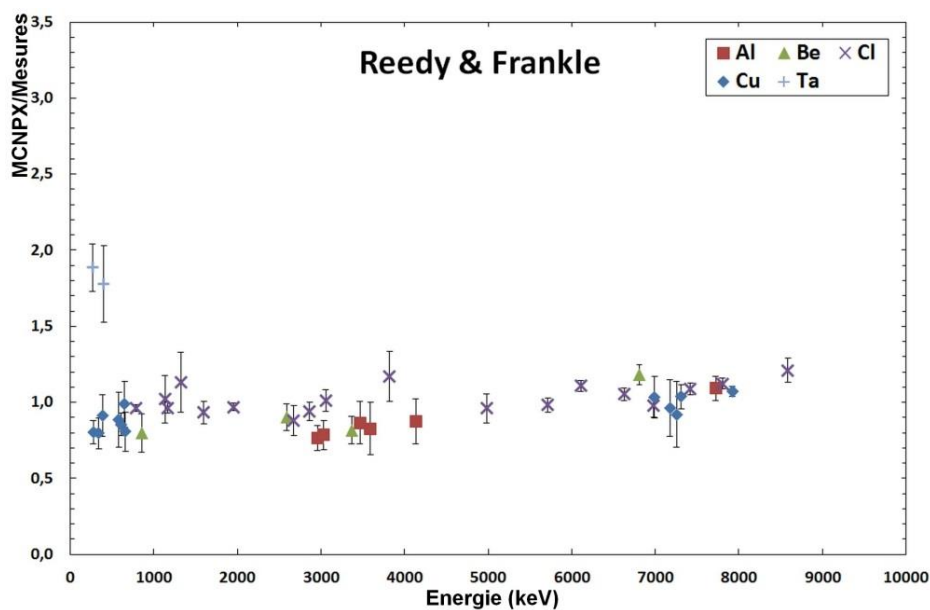


Figure 31. Rapport des aires nettes MCNPX/Mesure pour chaque raie gamma de capture, en utilisant les intensités de la base de données de Reedy & Frankle [Reedy02].

Pour la suite de l'étude, nous avons utilisé deux bases de données plus complètes et récentes, une publiée par l'AIEA en 2007, et ENSDF accessible via Capgam. Cette dernière est régulièrement mise à jour (la dernière date de 2013), toutefois le but premier de cette bibliothèque est l'étude des propriétés des structures du noyau et non les applications de l'activation neutronique pulsée [AIEA07]. Comme mentionné précédemment ces deux bases fournissent les valeurs pour chaque isotope et non pour l'élément naturel. Il devient alors nécessaire d'estimer dans un premier temps le taux de capture associé à chacun des isotopes présent dans l'échantillon, et de calculer ensuite le dépôt d'énergie dans le détecteur correspondant à l'émission respective de chacun de ces isotopes. Toutefois, la bibliothèque de Reedy & Frankle donne accès également aux intensités d'émission isotopiques, permettant ainsi une comparaison directe des données avec les bases de données AIEA et ENSDF, voir Tableau 6 :

Tableau 6. Comparaison des intensités d'émission des rayonnements gamma prompts pour chaque isotope des trois bibliothèques Reedy & Frankle (R&F) [Reedy02], ENSDF [Capgam13] et AIEA [AIEA07].

Elément	<sup>27</sup> Al						<sup>9</sup> Be			
Energie (keV)	2960	3033	3465	3591	4133	7724	853	2590	3367	6809
I <sub>γ</sub> (R&F)	9,6	8,8	7,0	4,7	6,9	26,8	23,5	22,6	33,1	65,5
I <sub>γ</sub> (ENSDF)	0,2	8,8	7,0	4,7	6,9	26,8	23,6	21,7	32,4	65,9
I <sub>γ</sub> (AIEA)	0,4	7,7	6,3	4,3	6,4	26,8	23,6	21,7	32,3	65,9
Elément	<sup>35</sup> Cl									
Energie (keV)	786	787	1132	1162	1164	1325	1599	1949	1956	2675
I <sub>γ</sub> (R&F)	10,5	16,3	1,9	2,3	27,1	1,3	3,5	19,3	12,5	1,6
I <sub>γ</sub> (ENSDF)	10,3	16,3	1,9	2,3	26,8	1,2	3,7	19,1	12,3	1,6
I <sub>γ</sub> (AIEA)	10,3	16,4	1,9	2,3	27,0	1,2	3,7	19,2	12,4	1,6
Elément	<sup>35</sup> Cl									
Energie (keV)	2864	3059	3822	4980	5715	6110	6623	6625	6982	7419
I <sub>γ</sub> (R&F)	5,8	3,5	1,1	3,6	5,3	20,6	7,8	4,7	2,3	10,5
I <sub>γ</sub> (ENSDF)	5,5	3,4	1,0	3,7	5,5	19,8	7,6	4,4	2,2	9,9
I <sub>γ</sub> (AIEA)	5,5	3,4	1,0	3,7	5,5	20,0	7,7	4,4	2,2	10,0
Elément	<sup>35</sup> Cl		<sup>65</sup> Cu		<sup>63</sup> Cu					
Energie (keV)	7802	8587	386	278	345	580	609	649	663	6989
I <sub>γ</sub> (R&F)	8,3	2,7	19,0	24,0	5,9	2,5	7,8	2,9	2,0	3,5
I <sub>γ</sub> (ENSDF)	8,0	2,7	19,0	24,0	5,9	2,5	7,8	2,9	2,0	3,5
I <sub>γ</sub> (AIEA)	8,1	2,7	19,6	28,6	6,9	2,9	8,6	3,3	2,3	4,0
Elément	<sup>63</sup> Cu		<sup>74</sup> Se		<sup>77</sup> Se					
Energie (keV)	7176	7308	7921	286	614	695	1309	1995	9198	
I <sub>γ</sub> (R&F)	2,6	9,0	/	/	/	/	/	/	/	
I <sub>γ</sub> (ENSDF)	2,6	9,0	33,1	54,0	68,0	13,9	10,1	3,6	4,8	
I <sub>γ</sub> (AIEA)	3,0	10,3	27,8	60,7	66,8	13,8	9,9	3,7	4,7	
Elément	<sup>76</sup> Se									
Energie (keV)	238	250	298	578	756	818	1297	7181		
I <sub>γ</sub> (R&F)	/	/	/	/	/	/	/	/		
I <sub>γ</sub> (ENSDF)	24,3	6,7	4,1	3,3	2,7	2,4	3,4	3,9		
I <sub>γ</sub> (AIEA)	25,9	6,7	4,2	3,0	2,3	2,2	3,0	3,3		
Elément	<sup>87</sup> Sr		<sup>181</sup> Ta							
Energie (keV)	898	1836	270	403						
I <sub>γ</sub> (R&F)	/	/	35,9	16,9						
I <sub>γ</sub> (ENSDF)	70,0	125,0	15,0	7,1						
I <sub>γ</sub> (AIEA)	59,0	86,6	12,7	5,8						

Pour la majorité des isotopes testés, on remarque que les intensités des raies gamma sont très proches, voire identiques. On notera qu'à l'exception du tantale et de la raie à 2958 keV de l'aluminium, la bibliothèque ENSDF est identique à celle de Reedy and Frankle. Les données fournies par l'AIEA montrent des écarts significatifs pour le <sup>87</sup>Sr et le <sup>74</sup>Se. Comme pour ENSDF, la raie à 2958 keV de l'aluminium est quasi inexistante malgré sa présence dans les spectres expérimentaux en Figure 21 [Nicol15]. En analysant les données fournies dans [Molnar04], on remarque que la raie gamma est effectivement repérée dans le spectre avec une intensité proche de la raie à 3033 keV, mais elle est mentionnée dans le tableau correspondant avec une intensité bien plus faible. La possibilité d'une erreur de retranscription n'est donc pas à exclure. Toutefois cette raie gamma étant



absente des deux dernières bases de données, celle-ci n'a pas été prise en compte dans les comparaisons suivantes.

Les résultats obtenus avec ENSDF sont représentés sur la Figure 32, avec les barres d'erreurs incluant les statistiques des mesures et des simulations, ainsi que les incertitudes sur les intensités d'émission des raies gamma de capture. Comme précédemment, les incertitudes de simulations sont faibles par rapport à celles des mesures. Les incertitudes sur les données de ENSDF sont quant à elles comprises entre 5 et 20 %, excepté dans le cas du chlore où elles sont de l'ordre de 1 %.

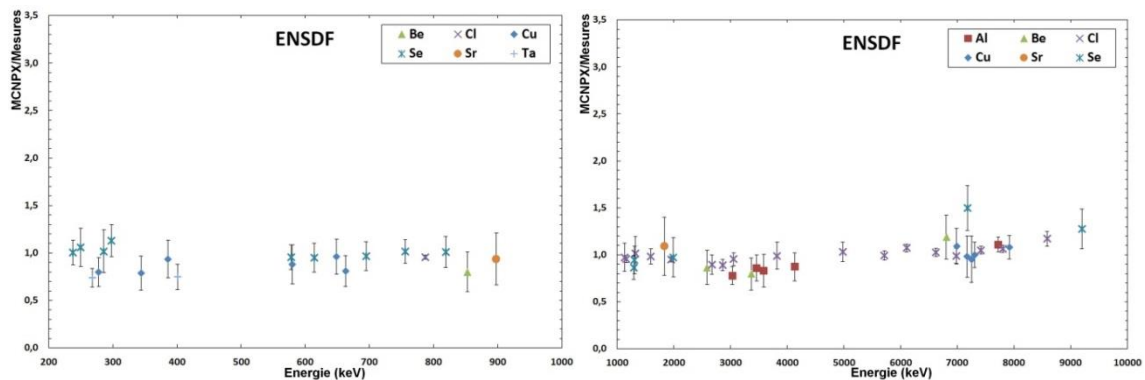


Figure 32. Rapport des aires nettes MCNPX/Mesure pour chaque raie gamma de capture, en utilisant les intensités des raies gamma de la base de données ENSDF [Capgam13]. A gauche les raies de 0.2 à 1 MeV, à droite de 1 à 10 MeV.

En utilisant cette nouvelle bibliothèque, on observe un meilleur accord pour les échantillons de tantale, sélénium et strontium. Cette fois ci, en considérant tous les éléments, la moyenne des rapports MCNPX/Mesure est de 0,96 avec un écart type de 0,13. Bien que les valeurs mentionnées ici soient très proches de celles obtenues précédemment avec la base de données de Reedy and Frankle, on notera que les moyennes et écarts types sont calculés sur l'ensemble des rapports.

Enfin, les résultats obtenus à partir des données AIEA sont représentés sur la Figure 33 avec comme pour ENSDF, des barres d'erreurs incluant les incertitudes sur les intensités d'émission gamma. L'accord général est ici aussi très bon avec une moyenne des écarts MCNPX/Mesure de 0,96 et un écart type de 0,15.

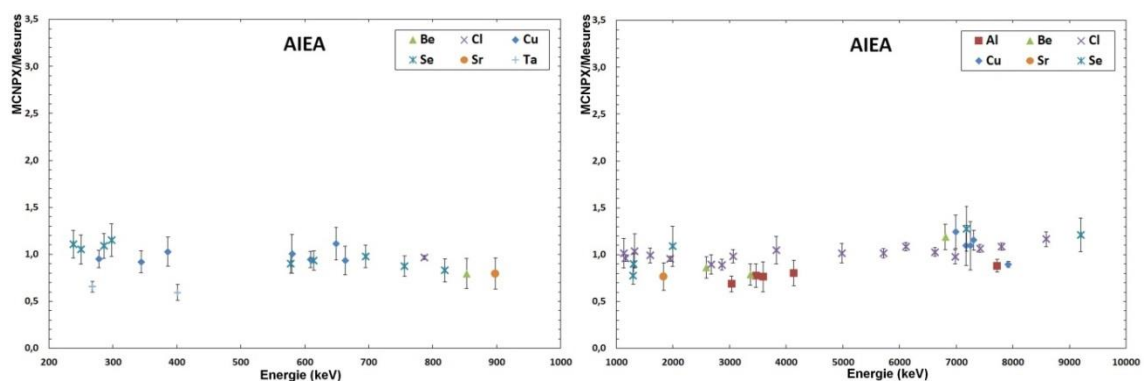


Figure 33. Rapport des aires nettes MCNPX/Mesure pour chaque raie gamma de capture, en utilisant les intensités des raies gamma de la base de données AIEA [AIEA07]. A gauche les raies de 0,2 à 1 MeV, à droite de 1 à 10 MeV.

Comme mentionné dans le paragraphe III.2, la méthode utilisée peut apporter un biais dû au choix de la segmentation de l'échantillon, surtout lorsque celui-ci possède des facteurs d'autoprotection neutronique et d'auto-absorption gamma élevés. La segmentation peut alors influencer de manière non négligeable les résultats de simulation. Dans le cas d'un élément à forte

section efficace d'absorption neutronique, la majeure partie des captures se produit à proximité de la surface externe, et le taux de réaction diminue très vite en profondeur de l'échantillon. Si celui-ci est moyenné sur un trop grand volume, cette variation ne sera pas reproduite, et l'émission gamma sera diluée dans le volume correspondant. Si, de plus, l'échantillon possède une forte densité, le fait de diluer l'émission gamma à travers un volume trop grand, au lieu de reproduire l'émission proche de la surface externe, peut entraîner une sous-estimation de l'émission globale de l'échantillon. En effet, la proportion de gamma émis en réalité à proximité de la surface doit alors traverser une épaisseur plus importante de matière et donc subir une atténuation plus élevée. Au vu des caractéristiques des échantillons (Tableau 3), seuls les échantillons de cuivre et de tantale peuvent être assujettis à ces effets de manière significative. Il a donc été choisi d'étudier par simulation l'influence de la segmentation pour ces deux échantillons. Pour cela, une nouvelle segmentation a été définie, comme illustré en Figure 34, où le segment de surface de 3 mm a été lui-même segmenté en plusieurs sous volumes d'épaisseurs variant de 2  $\mu\text{m}$  à 100  $\mu\text{m}$  depuis la surface vers l'intérieur de l'échantillon.

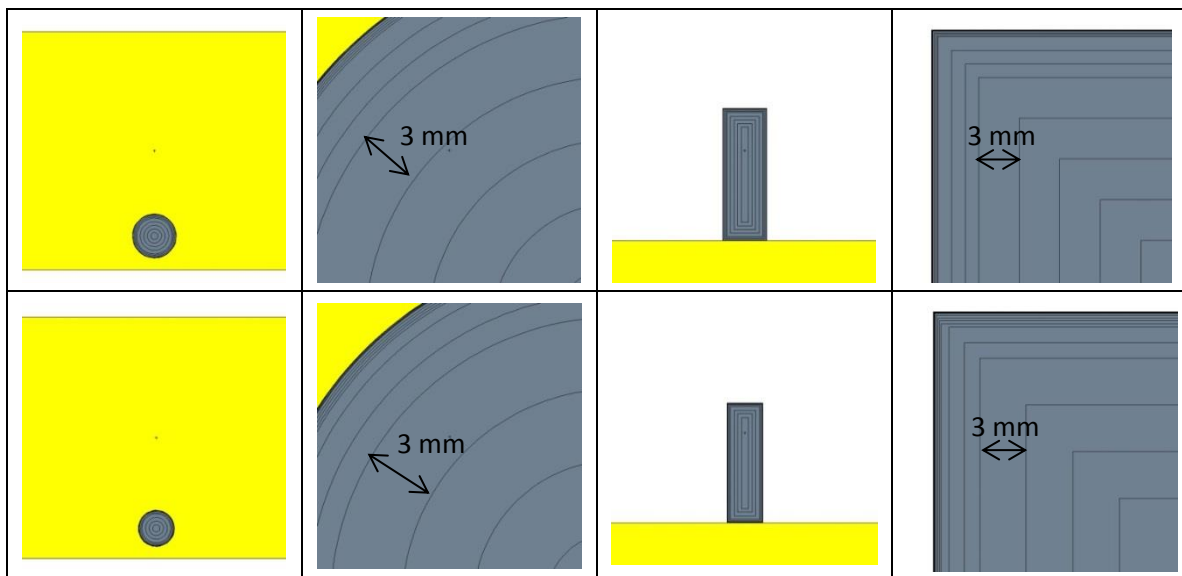


Figure 34. Segmentation fine des échantillons de cuivre et de tantale (coupes horizontale et verticale, avec agrandissements).

Les taux volumiques de capture radiative en fonction de la profondeur dans les échantillons de tantale et de cuivre sont représentés en Figure 35. On observe que, dans le cas du tantale, le taux volumiques de capture en surface est 2 fois plus important que celui estimé dans le cas de la segmentation plus grossière initiale (points et barres rouges en Figure 35). Cette différence n'est que de 20 % dans le cas du cuivre.

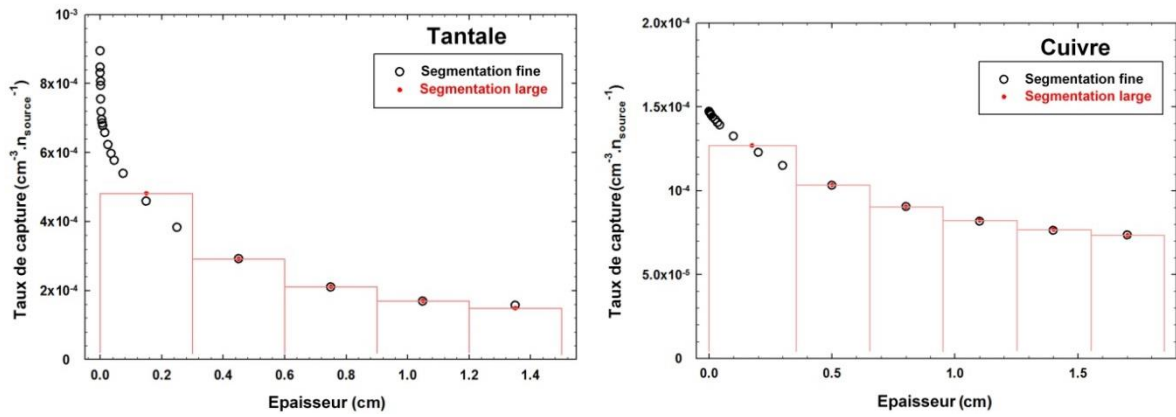


Figure 35. Taux de capture neutronique radiative par unité de volume dans chaque segment des échantillons de tantale et de cuivre. L'origine de l'axe des abscisses représente la surface externe de l'échantillon.

Les variations des coefficients de transmission, représentant la fraction de rayonnement gamma effectivement émis par les échantillons de tantale et de cuivre, en fonction de la profondeur d'émission, sont représentées en Figure 36 pour des énergies représentatives des raies gammas de capture correspondantes. Ces coefficients sont calculés à partir de la loi de Beer-Lambert

$$\frac{I}{I_0} = e^{-(\mu/\rho)\rho x} \quad (10)$$

Où

$I$  et  $I_0$  : courants photoniques atténués et non-atténués par une épaisseur  $x$  (cm) du matériau considéré,

$\mu/\rho$  : coefficient d'atténuation massique ( $\text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ ) disponible dans [NIST04],

$\rho$  : masse volumique de l'échantillon ( $\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$ ).

Sur les deux graphiques de la Figure 36 ont été insérées en pointillés les délimitations des sous volumes dans le cas de la segmentation large initiale.

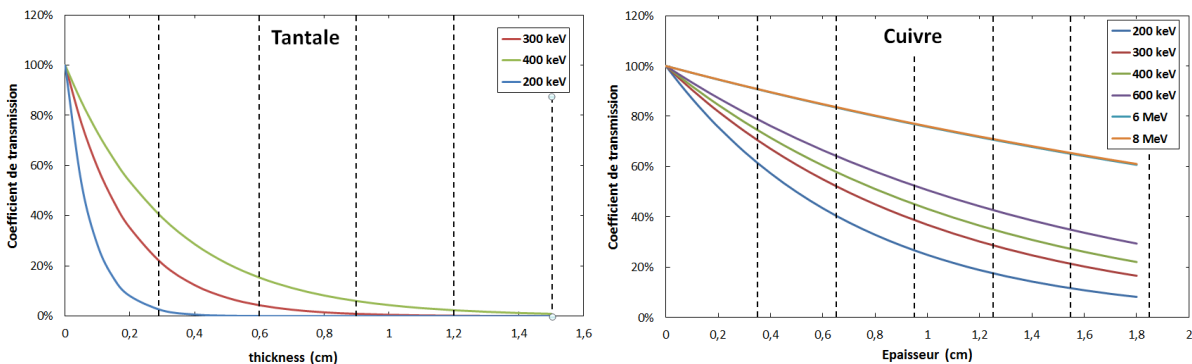


Figure 36. Coefficient de transmission des gammas de capture des échantillons de tantale et de cuivre en fonction de leur profondeur d'émission (le découpage en larges sous-volumes est indiqué en pointillés).

Au regard de cette dernière figure, on constate que l'atténuation des rayonnements gamma de capture produits dans le tantale varie énormément dans les trois premiers millimètres, rendant l'émission gamma de l'échantillon particulièrement sensible à la distribution du taux de capture dans le volume de surface correspondant. Dans le cas du cuivre, ce phénomène est beaucoup moins marqué. Suite à ces observations, la simulation du signal détecté lors de l'irradiation de l'échantillon de tantale a été reproduite en considérant la segmentation fine décrite précédemment. Pour cette dernière, les intensités des raies gamma fournies dans ENSDF ont été utilisées. Finalement, la considération de sous cellules plus fines en surface pour l'échantillon de tantale n'apporte qu'une augmentation de 10 % et 5 % du signal respectivement pour les raies à 270 keV et 403 keV.

Afin de compléter et terminer l'étude sur la segmentation, toujours dans le cas du tantale où l'effet de matrice est susceptible d'être significatif, l'échantillon a été décomposé en quatre secteurs angulaires (face et opposé au détecteur GeHP, et côté générateur de neutron et opposé, respectivement A, B, C et D en Figure 37) pour tenir compte de la dissymétrie de la cellule MEDINA et du fait que les échantillons ne sont pas en rotation pendant la mesure.

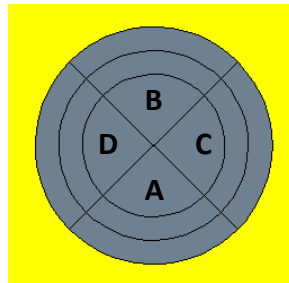


Figure 37. Segmentation de l'échantillon de tantale en quatre quarts (A. face au détecteur GeHP, B. opposé au détecteur GeHP, C. côté générateur de neutron, D. côté opposé au générateur de neutron).

Sur la Figure 38 sont représentés les taux de capture volumiques estimés dans chaque sous-secteur ainsi que dans chaque anneau ou cylindre concentrique (somme des secteurs A, B, C, D) : les deux anneaux externe et intermédiaire d'épaisseur 3 mm chacun, et le cylindre central de rayon 9 mm.

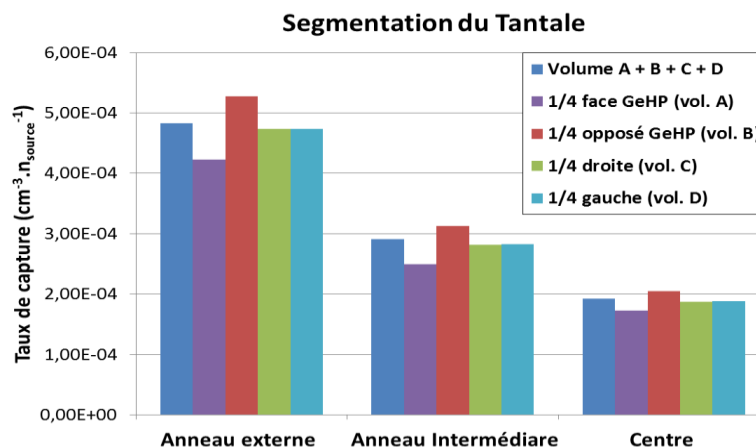


Figure 38. Comparaison des taux de capture neutronique radiative volumiques simulés dans l'échantillon de tantale dans le cas de trois cylindres concentriques, et une décomposition de ces mêmes cylindres en quatre secteurs par rapport au détecteur GeHP.

Le fait de moyenner le taux de capture sur le pourtour de l'échantillon induit une surestimation de l'émission gamma dans le secteur A (violet) face au détecteur et donc une surestimation du signal simulé si l'on considère que les rayonnements gamma émis depuis la face opposée au détecteur, qui sont au contraire sous-estimés (secteur B, en rouge), sont pratiquement écrantés par l'épaisseur d'échantillon. Comme illustré en Figure 36, c'est effectivement le cas du tantale où le rayonnement gamma est fortement atténué par une épaisseur de matière inférieure au rayon de l'échantillon. Finalement le signal détecté, estimé dans MCNP avec cette nouvelle segmentation, montre une diminution respective des deux raies gamma du tantale à 270 keV et 403 keV, de 8 % et 7 %. On pourra remarquer que ce phénomène compense plus ou moins la sous-estimation induite par la segmentation large, observée précédemment.

Le Tableau 7 résume les valeurs moyennes et écarts types des rapports MCNPX/Mesure en considérant d'une part l'ensemble des raies gamma mesurées, et d'autre part uniquement l'isotope <sup>35</sup>Cl qui constitue une référence en irradiation neutronique pulsée.

Tableau 7. Comparaison des bases de données de Lone, Reedy and Frankle, ENSDF, et l'AIEA au travers des moyennes et écarts types des ratios MCNPX/mesure, pour l'ensemble des points mesuré, et uniquement le <sup>35</sup>Cl.

	Lone	Reedy & Frankle	ENSDF	IAEA
Tous les $\gamma$	0,89 ± 0,43	0,98 ± 0,17	0,97 ± 0,13	0,96 ± 0,15
<sup>35</sup> Cl	1,05 ± 0,20	1,03 ± 0,09	1,00 ± 0,06	1,01 ± 0,07

En considérant les bases de données les plus récentes et l'incertitude sur l'émission du générateur de neutrons (estimé à 13 % [Havenith15] et pouvant atteindre à 20 %), on peut considérer que le modèle MCNP reproduit correctement l'expérience pour les mesures d'activation neutroniques pulsées dans la cellule MEDINA.

## V. Conclusion

La mesure sous irradiation pulsée, dans la cellule MEDINA, du rayonnement gamma prompt de capture neutronique d'échantillons d'éléments purs sous forme métallique, ou de composés chimiques sous forme de poudre, a permis d'identifier les raies gamma significatives pour des isotopes représentatifs de toxiques chimiques ou métaux lourds (Al, Be, Cl, Cu, Se, Sr et Ta).

Bien que présentant l'avantage de prendre en compte les effets de matrice, la méthode de simulation basée sur l'estimateur MCNP F5 (qui permet d'estimer le flux de rayonnement gamma ponctuellement) est limité par l'absence de données d'émission des raies gamma de capture pour certains isotopes, ainsi que par la perte d'information sur la direction des particules gamma entrant dans le détecteur lors de la seconde étape de calcul avec l'estimateur F8 (dépôt d'énergie dans le détecteur GeHP). L'obtention des résultats de simulation a donc été réalisée à l'aide d'un estimateur F4 (flux dans le volume de l'échantillon) couplée à une carte FM4 (taux de réaction de capture radiative) puis à l'estimateur F8 dans la seconde étape de calcul. Les échantillons ont été segmentés de manière concentrique afin de considérer au mieux les effets de matrice. Pour le cas d'échantillons à forte absorption neutronique et atténuation gamma, l'étude d'une segmentation plus fine a démontré que le biais induit ne devient significatif que pour l'échantillon le plus pénalisant, le tantale

(densité élevée, forte section efficace d'absorption neutronique, raies gamma de faible énergie). Toutefois le biais induit par la segmentation reste limité à environ  $\pm 20\%$ . Une solution pour remédier à cela, notamment pour le traitement d'échantillons de plus grands volumes, serait d'implémenter l'ensemble des données de production du rayonnement gamma prompts dans les bases de données MCNP. Ceci permettrait de revenir à une méthode par estimation du flux gamma F5 au voisinage du détecteur, ou encore une méthode de source surfacique secondaire via les cartes SSW et SSR (sauvegarde et propagation à partir d'une source secondaire), méthode plus longue mais offrant la possibilité de prise en compte des directions des particules.

Finalement, la comparaison des résultats de simulation avec la mesure montre un bon accord dans une plage d'environ  $\pm 20\%$  sur l'ensemble des raies gamma mesurées, ce qui est très satisfaisant en considérant l'ensemble des sources d'incertitudes, et notamment sur l'émission neutronique connue ici à  $\pm 13\%$ . On notera également la large incertitude sur les mesures due à la faible statistique de comptage et au fort bruit de fond continu. L'utilisation de plusieurs bases de données a permis d'observer, d'une part, leur évolution au court du temps, particulièrement marquée pour les raies de basses énergies et les éléments à numéro atomique élevé. Concernant les bases de données les plus récentes, les valeurs d'intensité des raies gamma prompts varient peu et le plus souvent les barres d'erreur se recoupent. On pourra noter que les plus fortes variations sont observées dans le cas du tantale, élément pouvant être difficile à quantifier expérimentalement de par ses caractéristiques conduisant à une activation neutronique principalement en surface de l'échantillon. On pourra également remarquer de possibles erreurs de transcription se propageant dans les différentes bases de données, comme notamment la raie gamma de l'aluminium à 2958 keV effectivement présente dans les spectres expérimentaux mais de très faible intensité selon deux bibliothèques. L'utilisation des bases de données récentes donne de bons résultats sur l'ensemble des raies gamma des échantillons étudiés validant le modèle MCNP de la cellule MEDINA qui peut donc être légitimement utilisés pour étudier ses performances et optimisations.



# Chapitre III : Caractérisation des matières nucléaires par la mesure du rayonnement gamma retardé de fission

---

## I. Introduction

Dans le premier chapitre, nous avons exposé différentes méthodes de caractérisation existantes et le besoin de déterminer au mieux l'activité alpha des colis de déchets afin d'assurer une classification optimale de ceux-ci. Dans cette nouvelle partie nous exposerons l'étude de faisabilité de quantification de l' $^{235}\text{U}$  et du  $^{239}\text{Pu}$  par mesure des rayonnements gamma retardés de fission. Cette méthode permet en effet d'obtenir des informations sur la composition isotopique de la matière fissile à partir de la différence des rendements de fission comme illustré en Figure 12 du chapitre I.

Dans le cadre de la collaboration entre le Laboratoire de Mesures Nucléaires du CEA Cadarache, et l'Institut pour la recherche sur l'Energie et le Climat, Gestion des déchets nucléaires et la sûreté des réacteurs du centre de recherche de Juliers (IEK-6, Forschungszentrum Jülich, Allemagne), dans laquelle s'inscrit les travaux de thèse, nous traiterons dans ce chapitre le cas des colis de déchets bitumés de 225 L produits en France et celui des colis de déchets bétonnés de 200 L produits en Allemagne. La cellule MEDINA de l'institut FZJ, décrite au chapitre I, est en effet conçue pour mesurer des colis de ce volume. Les enrobés bitumineux sont constitués de boues radioactives originaires des opérations de retraitement des combustibles usés, incorporées de manière homogène dans un bitume. Ils contiennent du plutonium, de l'uranium, de l'américium, du curium et divers émetteurs bêta, parmi lesquels l'isotope  $^{137}\text{Cs}$  est responsable d'une émission de rayonnement gamma très élevée.

Dans un premier temps, les mesures des rayonnements gamma retardés de fission, effectuées au Laboratoire de Mesures Nucléaires (CEA Cadarache) dans la cellule REGAIN, avec des échantillons métalliques d'uranium et de plutonium, seront rappelées. A partir de l'identification des raies gamma intéressantes pour la différenciation  $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ , les rendements d'émission des rayonnements gamma retardés de fission de ces deux isotopes ont été déterminés. Ces rendements d'émission ont alors été comparés aux valeurs estimées à partir des rendements de fission et des intensités d'émission gamma tabulés afin de valider leurs ordres de grandeur. Les rendements mesurés ont ensuite été utilisés afin d'extrapoler, à l'aide du modèle MCNP de la cellule MEDINA, une valeur de signal mesurable dans le cas des deux types de colis de déchets considérés, supposés homogènes en termes de matrice et de répartition de l'activité. Afin de déterminer les valeurs de limite de détection des isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$  à partir des intensités de signal extrapolées, le bruit de fond de la cellule MEDINA a aussi été mesuré en utilisant un colis maquette de déchets bétonnés.

Par la suite, dans le but de vérifier l'impact de la distribution de la matière fissile dans les colis de déchets et d'y associer une incertitude, deux cas enveloppes ont été considérés. Un premier où la matière fissile serait située en périphérie du colis et un second où elle serait concentrée au centre de



celui-ci. Bien que l'homogénéité des matrices bitume soit garantie par leur procédé d'élaboration, l'effet d'une hétérogénéité a tout de même été étudié en tant que cas école en comparaison à la matrice béton. Une autre étude complémentaire, visant à quantifier l'interférence due aux fissions rapides de l'isotope  $^{238}\text{U}$  est exposée à la fin de ce chapitre.

## II. Taux d'émission des rayonnements gamma retardés

Cette étude est basée sur des mesures antérieures à cette thèse [Clamond05], réalisées dans l'installation REGAIN qui se trouvait au Laboratoire de Mesure Nucléaire du CEA Cadarache et décrite dans le premier chapitre de ce mémoire. Pour rappel, cette cellule graphite était équipée d'un générateur de neutron GENIE 16 de SODERN et d'un détecteur germanium hyper pur de type n, d'efficacité relative 30 %. Les mesures ont consisté à mesurer le rayonnement gamma retardé induit sur des plaquettes d'uranium et plutonium constituées d'environ 8.9 g d' $^{235}\text{U}$  et 7.6 g de  $^{239}\text{Pu}$ , encapsulées dans une gaine en zirconium de dimension 55 mm × 20 mm × 1.15 mm.

Ces plaquettes ont été placées à 12.5 cm du détecteur, derrière une plaque de plomb de 4 mm d'épaisseur pour réduire le bruit de fond associé à l'émission gamma de l'isotope  $^{241}\text{Am}$ , ainsi que celle de rayons X du plutonium et de l'américium. La configuration est illustrée en Figure 39. Une source de  $^{60}\text{Co}$  a été placée à proximité de l'échantillon pour estimer et corriger le temps mort de la mesure.

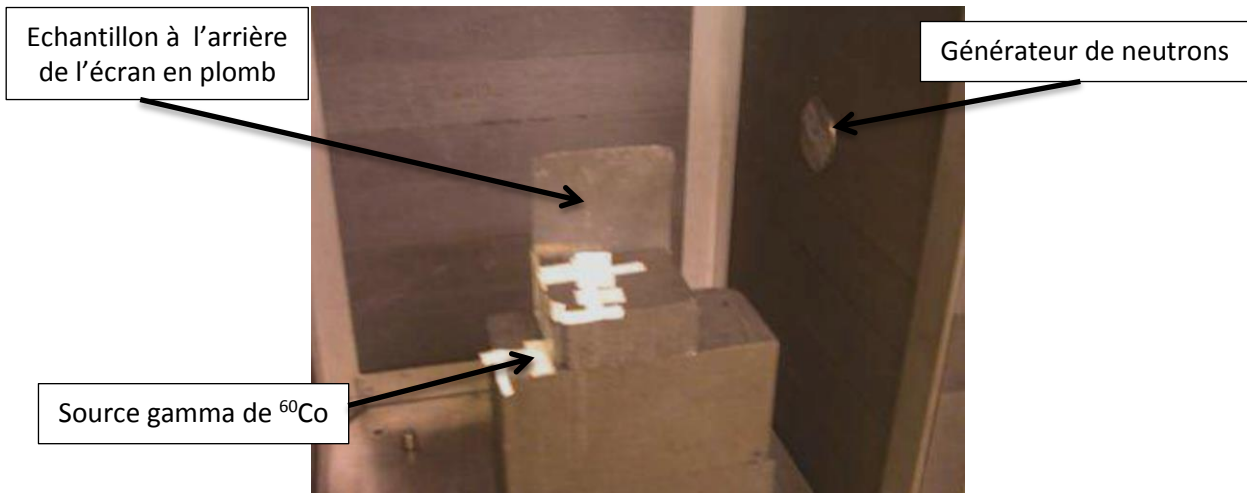


Figure 39. Configuration de mesure des échantillons dans la cavité de la cellule REGAIN.

La détection des rayonnements gamma retardés émis par les produits de fission à vie courte (de période radioactive inférieure à 10 min), a été préférentiellement réalisée entre les impulsions du générateur de neutrons, en irradiation cyclique, sur la base du chronogramme représenté en Figure 40.

La durée  $t_i$  des impulsions neutroniques était fixée à 10 ms, avec un temps de répétition  $t_{\text{rep}}$  de 50 ms pour un temps total d'irradiation  $T_i$  de 7200 s. L'émission neutronique moyenne, déduite du manuel de l'utilisateur, était de  $8 \times 10^7 \text{ n}\cdot\text{s}^{-1}$ . La mesure du rayonnement gamma retardé est

effectuée entre deux impulsions pendant une durée  $t_c$ , après un délai  $t_d$  de 10 ms à la suite de chaque impulsion afin d'éviter la détection des rayonnements gamma de capture radiative. La mesure du rayonnement gamma retardé des produits de fission ayant un temps de demi-vie supérieur à 15 min est, quant à elle, réalisée après irradiation (temps de transfert : 1 min). Le rayonnement gamma retardé  $\gamma$  est alors mesuré pendant un temps total de 46800 s, divisé en sous mesures de 900 s afin de pouvoir contrôler le temps de décroissance radioactive des produits de fission émetteurs gamma.

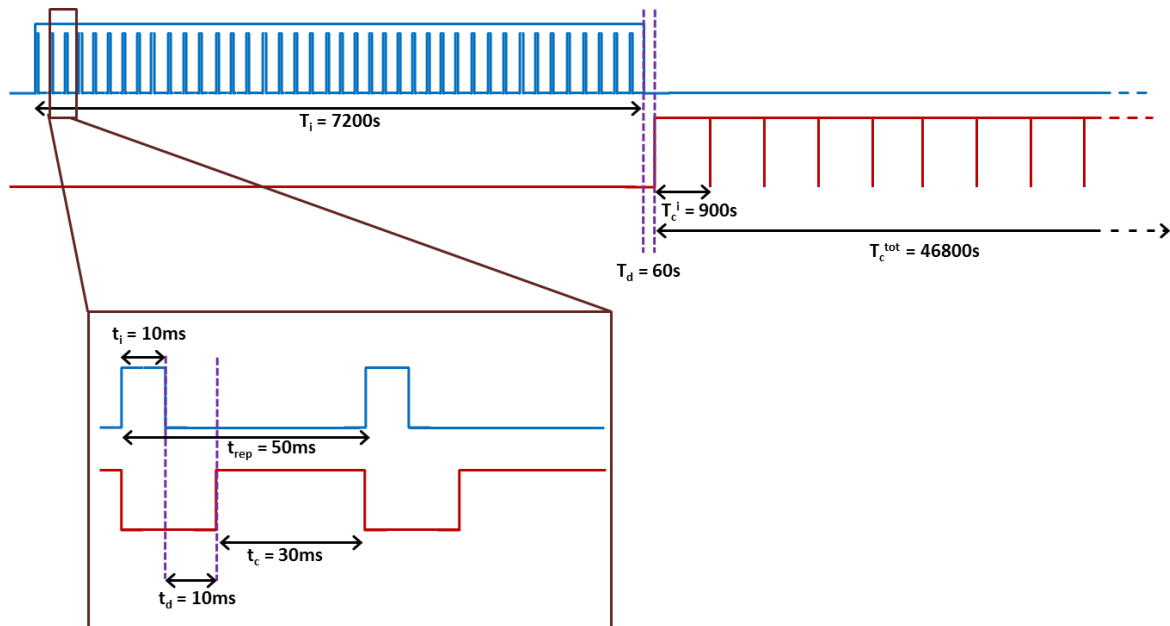


Figure 40. Chronogrammes pour l'activation cyclique  $t_i = 10$  ms,  $T_{rep} = 50$  ms,  $t_c = 30$  ms.

Concernant les mesures entre les impulsions du générateur de neutrons, l'utilisation de la source ponctuelle de  $^{60}\text{Co}$  a permis d'estimer les temps morts moyens lors des mesures des plaquettes d'uranium et de plutonium, respectivement 4.4 % et 14 %. On pourra remarquer qu'entre les impulsions neutroniques, les taux de comptage et les temps mort ne sont pas constant. Toutefois les valeurs de temps morts étant faibles, l'impact de la variabilité de ceux-ci reste ici limité. Le temps de mesure effectif du rayonnement gamma retardé des produits de fission à vie courte est donc de 4130 s pour l'échantillon d'uranium et de 3715 s pour celui de plutonium. Les spectres correspondant sont représentés en Figure 41. Afin de pouvoir soustraire d'éventuelles interférences, une mesure de bruit de fond actif de la cellule, c'est-à-dire sans les échantillons d'uranium et de plutonium, ainsi qu'une mesure passive de chaque échantillon avant irradiation, ont été effectuées.

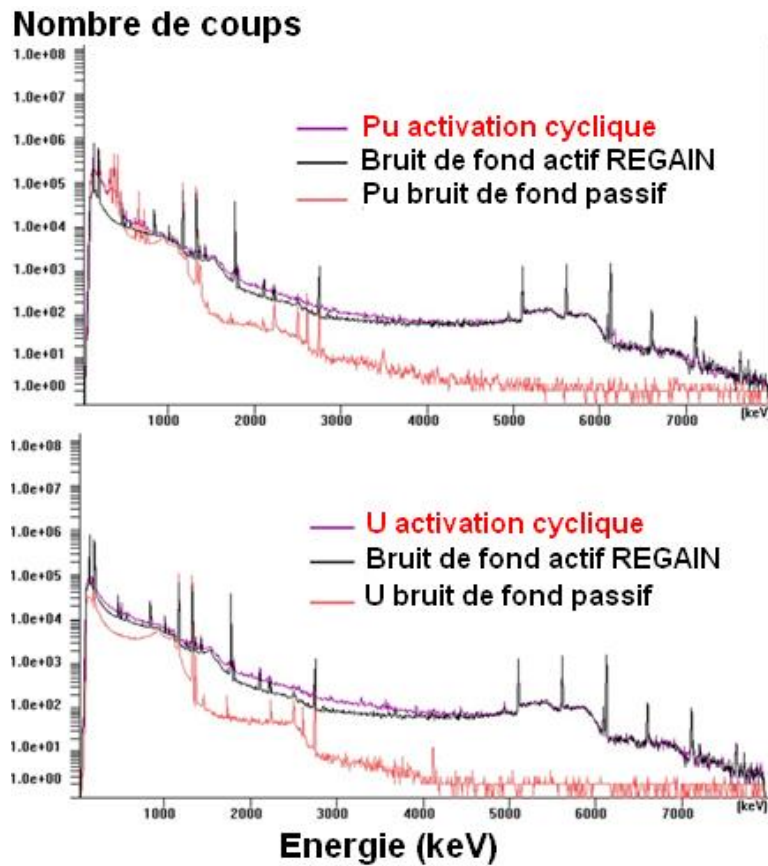


Figure 41. Spectres gamma obtenus pour la plaquette de plutonium (en haut) et la plaquette d'uranium (en bas). La mesure passive (7000 s) avant irradiation est indiquée en rouge, celle du bruit de fond actif de la cellule REGAIN entre les impulsions (temps de comptage 4320 s) est en noir et l'activation cyclique (temps de comptage 4320 s) de la plaquette est donnée en violet.

Pour ces mesures après irradiation, les échantillons sont transférés dans un spectromètre à bas bruit de fond représenté en Figure 42. La distance entre l'échantillon (uranium ou plutonium), la plaque de plomb et le détecteur GeHP sont identiques dans l'enceinte à bas bruit de fond et la cellule REGAIN, garantissant la même efficacité géométrique que pour la mesure pendant l'irradiation pulsée. Le détecteur utilisé dans le spectromètre à bas bruit de fond est un germanium coaxial hyper pur de type p, d'efficacité relative 25 %.

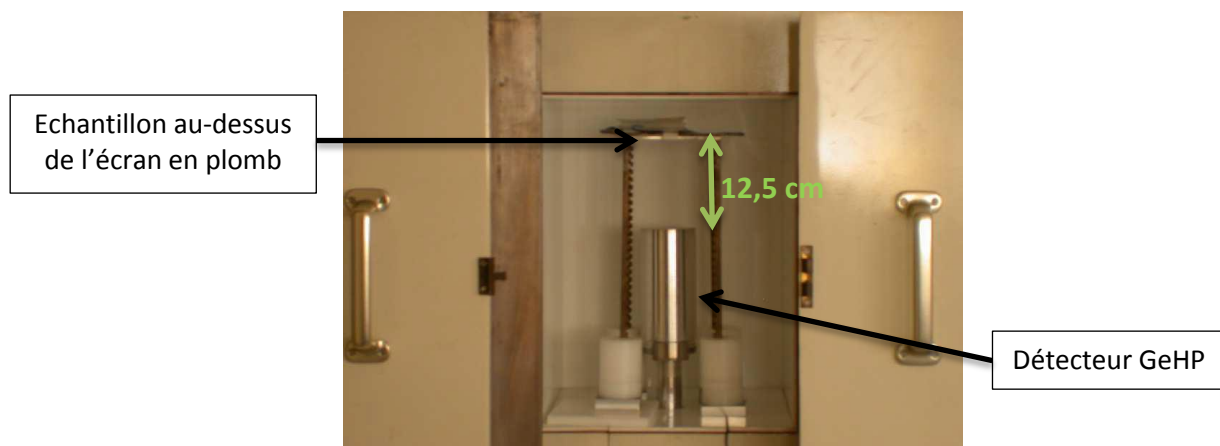


Figure 42. Configuration du spectromètre à bas bruit de fond pour la mesure des plaquettes d'uranium et de plutonium.

Le temps mort évalué pour ces mesures par l'électronique d'acquisition est inférieur à 1 %. Les spectres correspondants à la première acquisition de 900 s sont représentés en Figure 43. Comme précédemment, une mesure passive de l'échantillon avant irradiation a été effectuée afin de pouvoir tenir compte d'éventuelles interférences.

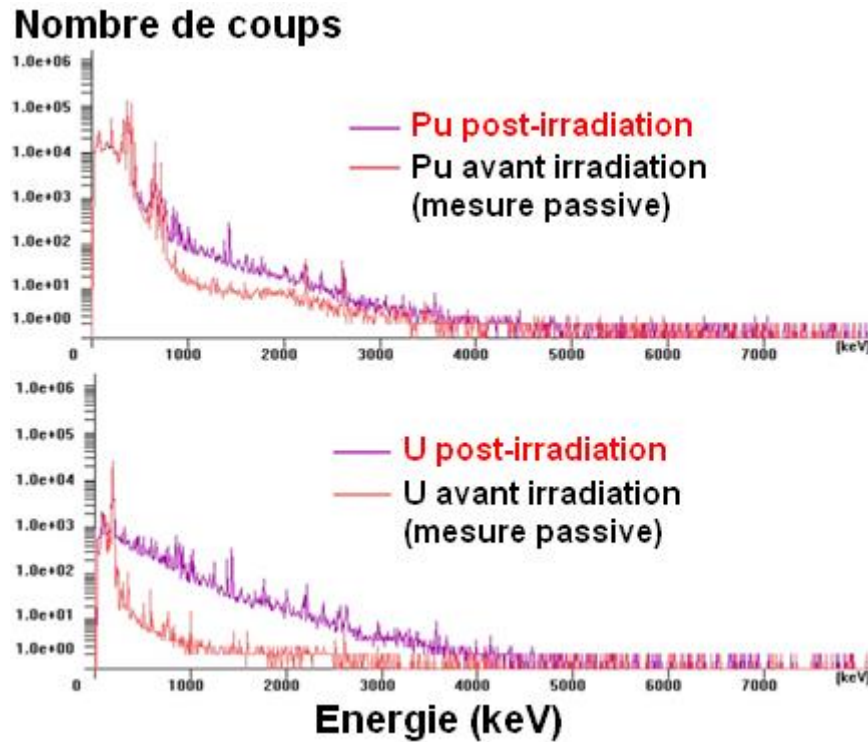


Figure 43. Spectres gamma obtenus pour la plaquette de plutonium (en haut) et la plaquette d'uranium (en bas). La mesure passive (900 s) avant irradiation est donnée en rouge et la première séquence de mesure de désactivation (900 s) de la plaquette est en violet.

L'identification des raies gamma intéressantes pour la différenciation  $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ , ainsi que les isotopes émetteurs correspondants sont détaillés dans la référence [Clamond05]. Sur la base de ces résultats, les spectres gamma retardés ont de nouveau été analysés à l'aide du logiciel de spectrométrie Visugamma, notamment en considérant un temps de comptage optimisé, à l'aide des sous mesures effectuées après l'irradiation. En effet, afin de maximiser le rapport signal sur bruit, l'estimation de l'intensité de chaque raie gamma retardée est effectuée pour un temps de mesure le plus proche possible de six fois la période radioactive du produit de fission émetteur correspondant. Dans le cas d'isotopes ayant un temps de demi-vie supérieur à 7800 s, l'estimation est réalisée sur la durée totale de mesure, soit 46800 s. L'ensemble des taux de comptage, ainsi que les isotopes et périodes radioactives correspondant sont résumés dans le Tableau 8. Les chaînes de décroissance des isotopes identifiés sont données en annexe 1. Afin d'illustrer la possibilité de différencier les isotopes  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{235}\text{U}$ , le rapport entre les raies gamma mesurées avec ces deux échantillons est également indiqué dans le Tableau 8, les taux de fissions des deux échantillons, calculés expérimentalement et par simulation [Clamond05], étant identiques à 10-15 % près.

Tableau 8. Taux de comptages des rayonnements gamma retardés mesurés dans la cellule REGAIN. Les isotopes mesurés après irradiation sont repérés sur fond grisé.

Isotopes précurseur	T <sub>1/2</sub> (s)	E (keV)	S <sup>REGAIN</sup> ( <sup>239</sup> Pu) (s <sup>-1</sup> )	S <sup>REGAIN</sup> ( <sup>235</sup> U) (s <sup>-1</sup> )	$\frac{S^{REGAIN}({}^{239}\text{Pu})}{S^{REGAIN}({}^{235}\text{U})}$
<sup>90</sup> Rb	158,0	830	0,343 (50 %)	1,138 (7 %)	0,301 (50 %)
<sup>90m</sup> Rb	258,0				
<sup>95</sup> Y	618,0	952	0,290 (32 %)	0,434 (13 %)	0,668 (35 %)
<sup>132</sup> Sb	167,4	973	0,775 (11 %)	0,909 (5 %)	0,852 (12 %)
<sup>132m</sup> Sb	246,0				
<sup>89</sup> Rb	909,0	1032	0,100 <sup>(1)</sup> (15 %)	0,241 <sup>(1)</sup> (8 %)	0,415 (17 %)
<sup>136</sup> I	83,40	1312	0,708 (10 %)	0,896 (4 %)	0,790 (11 %)
<sup>136m</sup> I	46,90				
<sup>92</sup> Sr	9756	1384	0,084 <sup>(2)</sup> (3 %)	0,182 <sup>(2)</sup> (2 %)	0,462 (4 %)
<sup>94</sup> Sr	75,30	1427	0,692 (13 %)	1,218 (4 %)	0,568 (14 %)
<sup>104</sup> Tc	1098	1614	0,035 <sup>(3)</sup> (8 %)	0,036 <sup>(3)</sup> (8 %)	0,972 (12 %)
<sup>134</sup> I	3150				

Valeur mesurée après irradiation en <sup>(1)</sup> 6300 s, <sup>(2)</sup> 46800 s et <sup>(3)</sup> 18900 s

Les incertitudes relatives mentionnées entre parenthèses dans le Tableau 8 sont celles données par le logiciel de spectrométrie Visugamma (à 1σ). Ces dernières sont relativement importantes pour certaines raies gamma du fait de la faible statistique de comptage, de l'importance du bruit de fond continu par rapport au signal utile et de l'interférence d'autres raies gamma, comme on peut le constater sur les Figure 44 et Figure 45. On pourra noter que les rapports sont cohérents avec ceux mesurés dans la référence [Carrel11b], e.g. 0,415 (± 17 %) pour l'isotope <sup>89</sup>Rb vs. 0,342, 0,462 (± 4 %) pour l'isotope <sup>92</sup>Sr vs. 0,486 et 0,568 (± 14 %) pour l'isotope <sup>94</sup>Sr vs. 0,610.

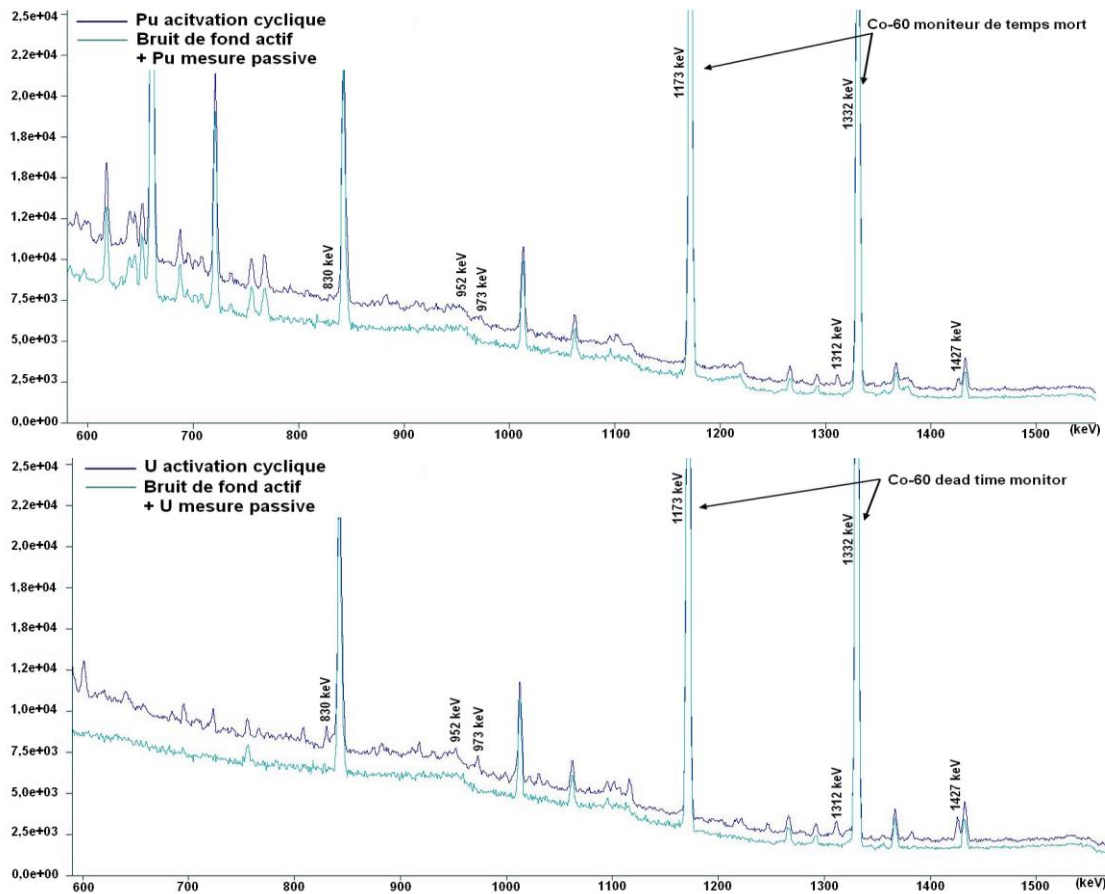


Figure 44. Principales raies gamma retardées mesurées en activation cyclique pour la plaquette de plutonium (en haut) et la plaquette d'uranium (en bas). Le bruit de fond est ici la somme du bruit de fond actif entre les impulsions et du bruit de fond passif des échantillons.

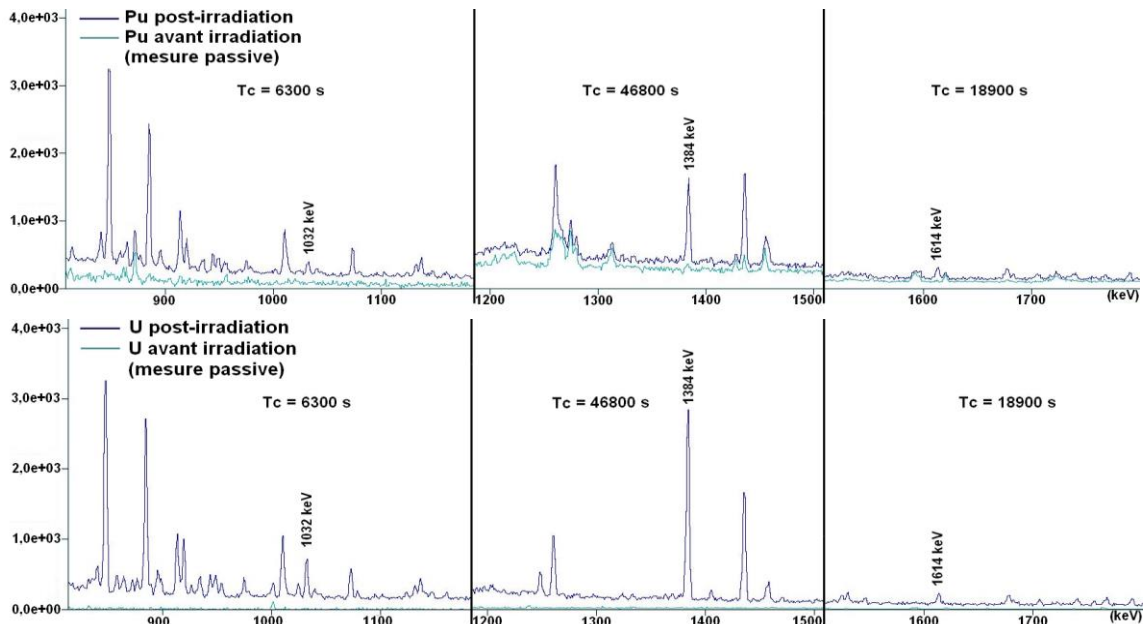


Figure 45. Principales raies gamma retardées mesurées après activation cyclique pour la plaquette de plutonium (en haut) et la plaquette d'uranium (en bas), pour différent temps de mesure optimisés en fonction des périodes radioactives de chacun des isotopes.

Afin de déterminer la fraction de rayonnements gamma retardés émis par fission, on exprime le taux de comptage d'une raie gamma d'intérêt à l'énergie  $E_\gamma$ ,  $S^{REGAIN}(E_\gamma)$  (en  $s^{-1}$ , voir Tableau 8) à partir de l'équation (11) :

$$S^{REGAIN}(E_\gamma) = R_f^{REGAIN} \times N_\gamma^{REGAIN}(E_\gamma) \times Eff^{REGAIN}(E_\gamma) \quad (11)$$

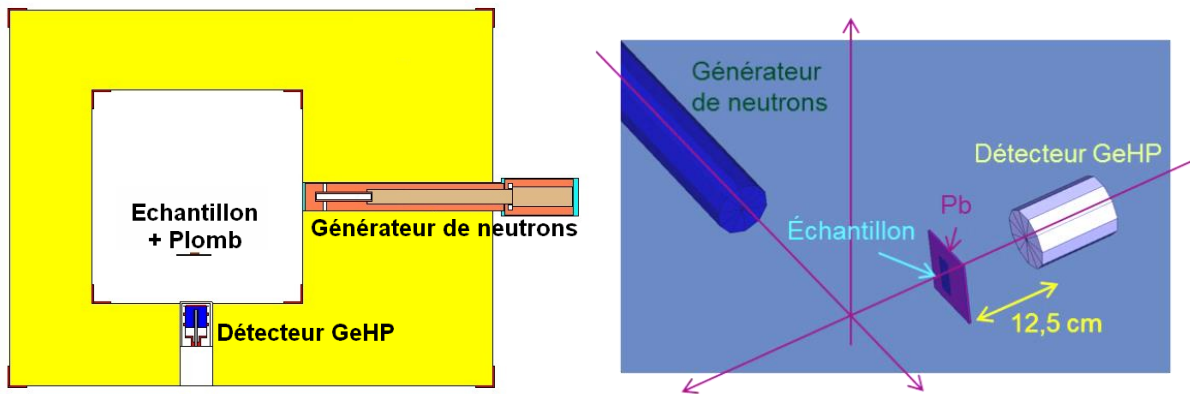
Où

$N_\gamma^{REGAIN}(E_\gamma)$  : fraction de rayonnement gamma retardé émis depuis l'échantillon par fission induite (nombre sans dimension)

$Eff^{REGAIN}(E_\gamma)$  : efficacité de détection du pic d'absorption totale de la raie gamma émise depuis l'échantillon, incluant les phénomènes d'auto-absorption et l'efficacité intrinsèque du détecteur (nombre de coups dans le pic par photon d'énergie  $E_\gamma$  émis dans l'échantillon, nombre sans dimension),

$R_f^{REGAIN}$  : taux de fission dans l'échantillon ( $s^{-1}$ ).

L'efficacité de détection ainsi que le taux de fission dans l'échantillon ont été déterminés à l'aide du modèle MCNP de la cellule REGAIN, voir Figure 46.



Pour l'estimation de l'efficacité de détection, l'échantillon est défini comme une source de raies discrètes correspondant aux énergies des rayonnements gamma retardés mesurées, émises de façon isotrope et uniforme dans l'échantillon. Le signal du détecteur est alors calculé à partir de l'estimateur F8 de MCNP (dépôt d'énergie dans le détecteur GeHP). Les valeurs d'efficacité sont représentées en Figure 47.

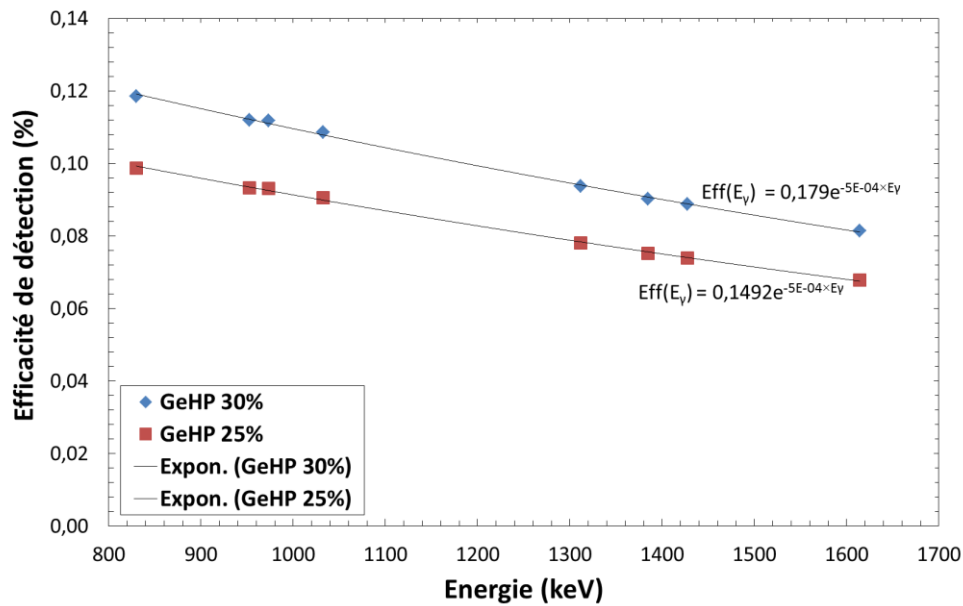


Figure 47. Efficacités de détection des rayonnements gamma émis depuis les échantillons d'uranium et plutonium, calculées avec MCNP, pour les détecteurs GeHP utilisés dans la cellule REGAIN (efficacité relative 30 %) et le spectromètre à bas bruit de fond (efficacité relative 25 %).

Seule la cellule REGAIN a été reproduite avec MCNP, la cellule à bas bruit de fond (spectrométrie gamma passive) ne nécessitant pas de modèle d'étude numérique dans le cadre de cette thèse. Comme les distances entre l'échantillon, la plaque de plomb et le détecteur étaient identiques pour les deux mesures séparées, les efficacités de détection du détecteur utilisé en mesure après irradiation (efficacité relative 25 %) ont été déduites à partir des valeurs estimées par MCNP pour le détecteur présent dans la cellule REGAIN (efficacité relative 30 %) par un simple rapport 25 % sur 30 %.

Le calcul MCNP du taux de fission  $R_f^{REGAIN}$  est réalisé sur la base de l'équation (12):

$$R_f^{REGAIN} = (F4 * FM4) \times V \times EN_{G16}^{REGAIN} \quad (12)$$

Où

$V$  : volume de l'échantillon d'uranium ou de plutonium ( $\text{cm}^3$ ),

$EN_{G16}^{REGAIN}$  : émission moyenne du générateur de neutrons GENIE 16 de REGAIN (ici  $8 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ ),

$(F4 * FM4)$  : taux de fission volumique (en  $\text{cm}^{-3}$  par neutron source) calculé par MCNP.

Comme pour le taux de capture dans le chapitre précédent, cette dernière valeur a été calculée à partir de l'estimateur de flux F4 de MCNP, convolué avec la section efficace de fission grâce à la carte FM4. On remarquera que cette estimation du taux de fission prend en compte le phénomène d'autoprotection neutronique, non négligeable pour des échantillons d'uranium ou plutonium métalliques hautement enrichis. Cet effet a été estimé par simulation MCNP, par comparaison des



flux de neutrons dans les échantillons avec et sans matières fissiles convolués avec les sections efficaces de fission des isotopes  $^{235}\text{U}$  ou  $^{239}\text{Pu}$ . Les facteurs de correction correspondant sont de 3,8 et 5,7 respectivement pour les échantillons d'uranium et de plutonium. Ces facteurs sont en accord avec les valeurs d'autoprotection neutronique déterminée expérimentalement en référence [Perot96, Perot98]. Toutefois, on notera que ces facteurs de correction peuvent avoir de larges incertitudes comme expliqué dans le paragraphe II.2, liées à la représentativité du modèle géométrique des échantillons.

En utilisant l'équation (11), il est alors possible de calculer la fraction de rayonnement gamma retardé émis par fission des isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$ ,  $N_{\gamma}^{\text{REGAIN}}(E_{\gamma})$ , à partir des taux de comptage expérimentaux mesurés dans la cellule REGAIN, voir Tableau 9.

**Tableau 9.** Fraction de rayonnement gamma retardé émis par fission des isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$ . Les incertitudes relatives ( $\sigma_{N_{\gamma}}/N_{\gamma}^{\text{REGAIN}}$ ) sont dominées par la précision statistique de la mesure dans la cellule REGAIN, les incertitudes statistiques de simulation MCNPX étant inférieur à 1 %. Les isotopes mesurés après irradiation sont repérés sur fond grisé.

Isotopes précurseurs	E(keV)	$^{239}\text{Pu}$		$^{235}\text{U}$	
		$N_{\gamma}^{\text{REGAIN}}$	$\sigma_{N_{\gamma}}/N_{\gamma}^{\text{REGAIN}}$	$N_{\gamma}^{\text{REGAIN}}$	$\sigma_{N_{\gamma}}/N_{\gamma}^{\text{REGAIN}}$
$^{90}\text{Rb}$ - $^{90\text{m}}\text{Rb}$	830,24	$5,53 \times 10^{-3}$	50 %	$1,81 \times 10^{-2}$	7 %
$^{95}\text{Y}$	952,4	$4,96 \times 10^{-3}$	32 %	$7,33 \times 10^{-3}$	13 %
$^{132}\text{Sb}$ - $^{132\text{m}}\text{Sb}$	973,1	$1,33 \times 10^{-2}$	11 %	$1,54 \times 10^{-2}$	5 %
$^{89}\text{Rb}$	1032,7	$3,56 \times 10^{-3}$	15 %	$7,64 \times 10^{-3}$	8 %
$^{136}\text{I}$ - $^{136\text{m}}\text{I}$	1312,01	$1,44 \times 10^{-2}$	10 %	$1,80 \times 10^{-2}$	4 %
$^{92}\text{Sr}$	1384,73	$2,67 \times 10^{-2}$	3 %	$5,16 \times 10^{-2}$	2 %
$^{94}\text{Sr}$	1427,3	$1,49 \times 10^{-2}$	13 %	$2,59 \times 10^{-2}$	4 %
$^{104}\text{Tc}$ - $^{134}\text{I}$	1614,4	$4,99 \times 10^{-3}$	8 %	$4,58 \times 10^{-3}$	8 %

### III. Comparaison des taux d'émission mesurés et tabulés

Les rendements d'émission des rayonnement gamma retardés de fission,  $N_{\gamma}^{lib}(E_{\gamma})$ , peuvent également être calculés à partir des données tabulées selon les équations suivantes, respectivement pour les mesures entre les impulsions et celles après l'irradiation :

$$N_{\gamma}^{lib}(E_{\gamma}) = F_c^f \times I_{\gamma}(E_{\gamma}) \times \frac{t_c}{t_i + t_d + t_c} \times \left[ \frac{\tau}{T_i} \times \left( \exp\left(-\frac{T_i}{\tau}\right) - 1 \right) + 1 \right] \quad (13)$$

$$\begin{aligned} N_{\gamma}^{lib}(E_{\gamma}) = I_{\gamma}(E_{\gamma}) & \times \left\{ \frac{F_i^f \cdot \tau_f}{T_i} \times \left( 1 - \exp\left(-\frac{T_i}{\tau_f}\right) \right) \times \exp\left(-\frac{T_d}{\tau_f}\right) \times \left( 1 - \exp\left(-\frac{T_c}{\tau_f}\right) \right) + \frac{F_c^p}{T_i} \right. \\ & \times \frac{\tau_f \tau_p}{\tau_p - \tau_f} \left[ \frac{\tau_f}{\tau_p} \cdot \left( 1 - \exp\left(-\frac{T_i}{\tau_f}\right) \right) \times \exp\left(-\frac{T_d}{\tau_f}\right) \times \left( \exp\left(-\frac{T_c}{\tau_f}\right) - 1 \right) \right. \\ & \left. \left. - \frac{\tau_p}{\tau_f} \times \left( 1 - \exp\left(-\frac{T_i}{\tau_p}\right) \right) \times \exp\left(-\frac{T_d}{\tau_p}\right) \times \left( \exp\left(-\frac{T_c}{\tau_p}\right) - 1 \right) \right] \right\} \quad (14) \end{aligned}$$

Où

$\tau = T_{1/2} / \ln(2)$  : constante de temps radioactive de l'émetteur de la raie  $E_{\gamma}$ , les indices f et p faisant référence à l'isotope émetteur gamma (désigné comme noyaux fils) et à l'isotope précurseur (désigné comme noyaux père),

$F_c$  et  $F_i$  : probabilités de production des produits de fission correspondants, pour une fission, et incluant ou non la production par décroissance des isotopes précurseurs (rendement de fission cumulé et indépendant, respectivement, généralement tabulés pour des fissions induites par des neutrons thermiques),

$I_{\gamma}(E_{\gamma})$  : rapport d'embranchement de la raie gamma émise suite à la désintégration de ce fragment de fission [LNHB14, NNDC16].

On notera que pour les mesures entre les impulsions neutroniques, la période radioactive des isotopes précurseurs (noyaux pères) des émetteurs gamma d'intérêt (noyaux fils) étant très inférieure à la période totale d'irradiation ( $T_i = 7200$  s), il est possible de considérer directement le rendement de production cumulé des noyaux fils,  $F_c^f$  dans l'équation (13). A l'exception d'une fraction d'isotopes précurseurs (pères) produits lors des derniers cycles d'irradiation, la quasi-totalité ( $\approx 99\%$ ) des noyaux pères auront effectivement donné les isotopes fils d'intérêt par décroissance radioactive.

Pour illustrer cette affirmation, précisons que l'équation (13) est déduite de l'équation (15) qui décrit l'évolution du nombre d'isotopes fils pendant l'irradiation,  $N_f(t)$  (sa démonstration, tirée de l'annexe 1 de la référence [Carrel07], est détaillée dans l'annexe 2 du présent mémoire de thèse).

$$N_f(t) = R_f \times \left[ \tau_f \times F_c^f \times \left( 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_f}\right) \right) + \frac{\tau_f \times \tau_p}{\tau_p - \tau_f} \times F_c^p \times \left( \exp\left(-\frac{t}{\tau_f}\right) - \exp\left(-\frac{t}{\tau_p}\right) \right) \right] \quad (15)$$

Cette équation (15), valable dans le cas d'une irradiation continue, est utilisée ici car la période radioactive des noyaux fils (de 47 s à 618 s) est bien plus grande que la période de répétition de l'irradiation pulsée (50 ms), laquelle est donc assimilable à une irradiation continue. Le nombre de décroissances associées à l'isotope émetteur gamma d'intérêt, utilisé dans l'équation (13) est donné par l'intégrale de  $\lambda_f \times N_f(t)$  entre 0 et  $T_i$  (7200 s). On remarquera que pour une irradiation de 7200 s, l'intégrale du second terme de l'équation (15) est de l'ordre de 1 %, et donc seule celle du premier terme a été conservée dans l'équation (13).

Pour les mesures après irradiation, il est nécessaire de décrire séparément l'activation des noyaux pères et fils durant l'irradiation, ainsi que leur décroissance radioactive pendant les temps de transfert et de comptage. En effet, la période radioactive des isotopes précurseurs n'est pas négligeable par rapport à celle des noyaux fils, émetteurs gamma d'intérêt. Il en résulte donc une équation (14) plus complexe. Les détails sur l'évolution du nombre de noyaux père  $N_p(t)$  et de noyaux fils  $N_f(t)$ , également tirés de l'annexe 1 de [Carrel07], sont ici donnés en annexe 2.

Après comparaison du rendement cumulé de fission  $F_\gamma$  de plusieurs bases de données, voir Figure 48, la bibliothèque JEFF3.1 [JEFF05], ayant les incertitudes les plus basses pour certains isotopes ( $^{95}\text{Y}$ ,  $^{90}\text{Rb}$  and  $^{90\text{m}}\text{Rb}$ ), a été sélectionnée pour la comparaison ultérieure des rendements d'émission des rayonnements gamma retardés de fission mesurés et issus des données tabulées.

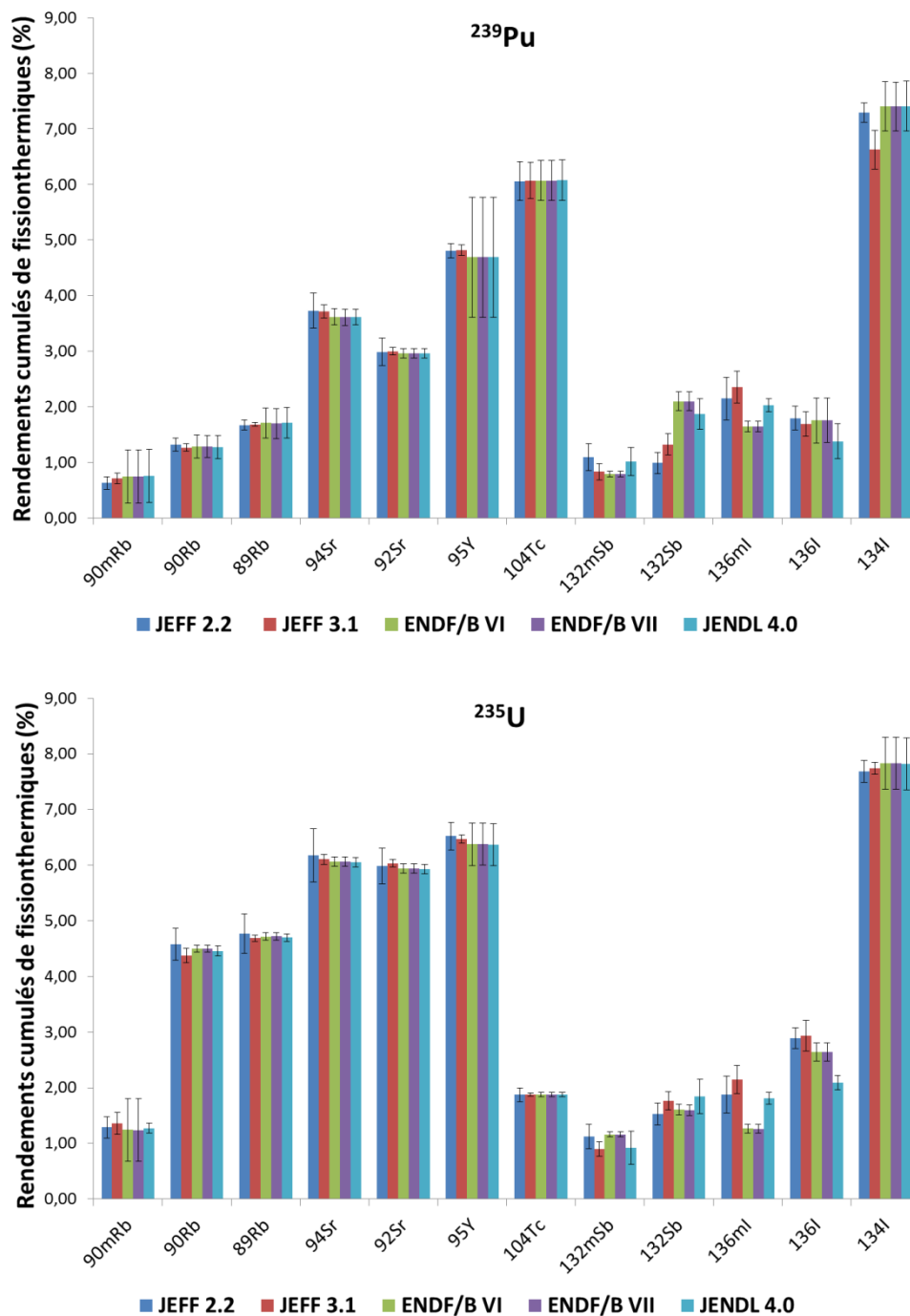


Figure 48. Rendements de fission cumulés des isotopes  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{235}\text{U}$  de plusieurs bases de données (nombre de noyaux d'un isotope spécifique, produit directement par fission et par décroissance de noyaux précurseurs, pour 100 fissions induites par des neutrons thermiques).

Le Tableau 10 résume les taux de rayonnements gamma retardés calculés à partir des équations (13) et (14). Les incertitudes relatives sont calculées à partir de celles sur les rendements de fission tabulées [JEFF05] et les rapports d'embranchement des raies gamma correspondantes [LNHB14], [NNDC16].

Tableau 10. Fraction des rayonnements gamma retardés émis par fission des isotopes  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{235}\text{U}$ , calculées à partir des données tabulées et des équations (13) et (14). Les isotopes mesurés après irradiation sont repérés sur fond grisé.

Isotopes précurseurs	E(keV)	$^{239}\text{Pu}$		$^{235}\text{U}$	
		$N_V^{\text{tab}}$	$\sigma_{N_V}/N_V^{\text{tab}}$	$N_V^{\text{tab}}$	$\sigma_{N_V}/N_V^{\text{tab}}$
$^{90}\text{Rb}-^{90\text{m}}\text{Rb}$	830,24	$6,75 \times 10^{-3}$	10 %	$1,74 \times 10^{-2}$	8 %
$^{95}\text{Y}$	952,4	$4,01 \times 10^{-3}$	2 %	$5,38 \times 10^{-3}$	1 %
$^{132}\text{Sb}-^{132\text{m}}\text{Sb}$	973,1	$1,20 \times 10^{-2}$	12 %	$1,49 \times 10^{-2}$	9 %
$^{89}\text{Rb}$	1032,7	$2,29 \times 10^{-3}$	5 %	$6,39 \times 10^{-3}$	5 %
$^{136}\text{I}-^{136\text{m}}\text{I}$	1312,01	$2,06 \times 10^{-2}$	9 %	$2,43 \times 10^{-2}$	8 %
$^{92}\text{Sr}$	1384,73	$2,03 \times 10^{-3}$	2 %	$4,08 \times 10^{-2}$	1 %
$^{94}\text{Sr}$	1427,3	$2,07 \times 10^{-2}$	3 %	$3,40 \times 10^{-2}$	2 %
$^{104}\text{Tc}-^{134}\text{I}$	1614,4	$5,18 \times 10^{-3}$	3 %	$6,71 \times 10^{-3}$	4 %

Le rapport R des rendements d'émission issus des données tabulées avec ceux obtenus grâce aux mesures dans REGAIN, est donné dans le Tableau 11. Pour certaines raies gamma, telles que 952 keV et 1614 keV, les écarts observés s'expliquent en partie par la faible précision de l'estimation des aires nettes à partir des spectres mesurés (voir Tableau 8, Figure 44 et Figure 45). De plus, des variations significatives de ces aires nettes ont pu être observées pour les pics de faible amplitude ou en interférence avec une raie voisine, ceci en faisant varier les paramètres d'estimation du fond Compton sous les pics, ou d'ajustement gaussien des raies gamma. L'incertitude associée à l'aire nette est alors sous-estimée par rapport à celle indiquée par le logiciel de spectrométrie gamma et reportée dans le Tableau 9. Il est donc possible que l'incertitude sur les rapports du Tableau 11 soit également sous-estimée.

Tableau 11. Rapports des rendements d'émission des rayonnements gamma retardés déterminés à partir des mesures (Tableau 9) et des données tabulées (Tableau 10). Les isotopes mesurés après irradiation sont repérés sur fond grisé.

Isotopes précurseurs	E(keV)	$^{239}\text{Pu}$		$^{235}\text{U}$	
		R	$\sigma_R/R$	R	$\sigma_R/R$
$^{90}\text{Rb}-^{90\text{m}}\text{Rb}$	830,24	0,82	51 %	1,04	11 %
$^{95}\text{Y}$	952,4	1,24	32 %	1,36	13 %
$^{132}\text{Sb}-^{132\text{m}}\text{Sb}$	973,1	1,10	16 %	1,03	10 %
$^{89}\text{Rb}$	1032,7	1,55	16 %	1,20	9 %
$^{136}\text{I}-^{136\text{m}}\text{I}$	1312,01	0,70	14 %	0,74	9 %
$^{92}\text{Sr}$	1384,73	1,32	4 %	1,27	2 %
$^{94}\text{Sr}$	1427,3	0,72	13 %	0,76	4 %
$^{104}\text{Tc}-^{134}\text{I}$	1614,4	0,96	8 %	0,68	8 %

Au-delà de ces incertitudes statistiques provenant de l'extraction des aires nettes des raies gamma des spectres mesurés, des sources d'erreurs systématiques peuvent également expliquer les écarts entre les rendements d'émission des rayonnements gamma retardés de fission mesuré et issus de données tabulées :

- Afin de vérifier les calculs MCNP, le taux de fission induit dans les échantillons d'uranium et de plutonium a été mesuré à l'aide de compteurs à  $^3\text{He}$  entouré de polyéthylène et de cadmium [Clamond05]. Ces blocs détecteurs étaient positionnés à la place du détecteur germanium qui avait été retiré de la cellule REGAIN pour cette mesure. Le taux de fission a alors été déterminé à partir de la détection des neutrons prompts de fission, mesurés entre les impulsions, divisé par l'efficacité de détection des neutrons de fission. Cette dernière a été déterminée au préalable par mesure d'une source de  $^{252}\text{Cf}$  positionnée au même niveau que les échantillons d'uranium et de plutonium. Les taux de fission ainsi mesurés sont supérieurs de 55 % et 37 % par rapport à la simulation, respectivement pour les échantillons d'uranium et de plutonium. Cet écart provient probablement de l'incertitude sur la géométrie des plaquettes qui peut avoir un effet significatif sur l'autoprotection neutronique dans ces échantillons (facteurs calculés environ égaux à 3,8 et 5,7 respectivement pour celui d'uranium et de plutonium). L'incertitude sur l'émission neutronique moyenne du générateur (de l'ordre de 10 %) peut également contribuer à ces écarts [Perot96, Perot98].
- Le modèle MCNP du détecteur GeHP est basé sur les données du constructeur, garantissant seulement une efficacité relative du cristal et non pas sa géométrie exacte.
- Le rendement d'émission des rayonnements gamma retardés de fission calculé à partir des données tabulées fait uniquement référence aux neutrons thermiques, et ne prend pas en compte les possibles fissions induites par des neutrons rapides. Le calcul MCNP montre cependant que ces dernières ne représentent que 4,2 % et 3,5 % des fissions des isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$ , respectivement dans les échantillons utilisés. Toutefois, les neutrons rapides peuvent également induire des fissions sur les isotopes fertiles tels que  $^{238}\text{U}$  (6,29 % de la masse de l'échantillon d'uranium) et  $^{240}\text{Pu}$  (7,82 % de la masse de l'échantillon de plutonium). Ceux-ci n'ont pas été considérés dans le modèle précédent. De la même manière, les neutrons thermiques induisent des fissions sur l'isotope  $^{241}\text{Pu}$ , lui aussi non modélisé. Toutefois celui-ci n'est présent qu'en faible quantité dans l'échantillon de plutonium (environ 0,23 % de la masse). Un calcul MCNP montre que chacune de ces contributions ne représentent qu'environ 1 % des fissions induites dans les échantillons respectifs.

En conclusion, la faible précision statistique sur la mesure de certaines raies gamma retardés de fission ne permet pas une mesure précise des rendements d'émission de rayonnements gamma retardés. Cependant, les ordres de grandeur obtenus sont cohérents avec les valeurs de la littérature. Ces valeurs déterminées à partir des mesures dans la cellule REGAIN ont donc été utilisées dans la suite de ce chapitre pour étudier par simulation la faisabilité de la mesure de colis de déchets radioactifs dans la cellule MEDINA.

## IV. Performances pour des fûts de déchets dans la cellule MEDINA

### IV.1. Modèle numérique MCNP

La cellule REGAIN décrite précédemment n'est actuellement plus opérationnelle du fait de la mise à l'arrêt de l'installation COMIR où elle se trouvait. Les performances de la méthode de caractérisation des isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$  par mesure des rayonnements gamma retardés de fission dans un fût de déchets de 225 L ont donc été étudiées pour la cellule MEDINA. Cette étude a été réalisée à partir du modèle MCNP de la cellule MEDINA, décrit et validé dans les chapitres I et II, et des résultats expérimentaux exposés dans le paragraphe précédent. Deux types de matrices ont été considérées, une première d'enrobé bitumineux caractéristique de colis de déchets de 225 L, produits en France, contenant des boues radioactives issues du retraitement de combustibles usés et incorporées dans du bitume de manière homogène [Perot12]. L'homogénéité de ce type de matrice, dont les éléments principaux de la composition sont indiqués dans le Tableau 12, est garantie par le processus industriel. Une seconde matrice de type béton, représentative notamment de déchets de 200 L conditionnés en Allemagne, a été modélisée. Les éléments principaux de la composition de ce béton léger, de densité 1,38 [Mauerhofer14] sont également indiqués dans le Tableau 12.

Tableau 12. Composition des matrices d'enrobé bitumineux ( $d = 1,30$ ) et de béton léger ( $d = 1,38$ ). Seuls les pourcentages massiques des principaux composants sont présentés ici.

Elément	Enrobé bitumineux	Béton léger
Hydrogène	≈ 6 %	1,4 %
Carbone	≈ 48 %	-
Oxygène	≈ 16 %	47,3 %
Sodium	-	0,5 %
Aluminium	-	4,9 %
Silicon	-	17,4 %
Souffre	≈ 5 %	0,7 %
Calcium		23,3 %
Fer	≈ 4 %	2,8 %
Baryum	≈ 3 %	-

Les simulations avec chacune de ces deux matrices ont été réalisées pour des fûts de déchets de 225 L (29 cm de rayon et 85 cm de hauteur).

Tout comme au chapitre précédent, l'estimation du signal mesuré à partir de l'estimateur F8 ne peut être réalisée de manière fiable avec une source neutronique. De plus, comme indiqué à la fin du chapitre I, les versions MCNP disponibles pour ce travail de thèse [MCNP5, MCNPX240] ne génèrent pas de rayonnements gamma retardés. Les simulations ont donc été réalisées en deux étapes, la première consistant à estimer le taux de fission  $R_f^{\text{MEDINA}}$  dans la matrice (béton ou bitume), du fût de

225 L. La deuxième étape consiste à réémettre les rayonnements gamma retardés depuis la matrice avec des intensités correspondant au produit du taux de fission et des rendements d'émission des rayonnements gamma retardés répertoriés dans le Tableau 9. Dans chacune des deux matrices ont été incorporés de manière homogène 10 g d'isotope  $^{235}\text{U}$  ou  $^{239}\text{Pu}$ , ce qui correspond à environ 0,003 % de la masse totale de la matrice (30 mg/kg). Afin de pouvoir utiliser les rendements d'émission mesurés dans la cellule REGAIN pour estimer le signal mesurable à partir de l'irradiation de colis de déchets de 225 L dans la cellule MEDINA, le même chronogramme a été utilisé (Figure 40). Le délai de 10 ms entre la fin d'une impulsion et le début de la fenêtre d'acquisition inter impulsion pour la mesure des produits de fission à vie courte garantit, également dans la cellule MEDINA, une faible proportion de rayonnements de capture. En effet, le temps de vie moyen des neutrons thermiques dans la cellule est d'environ 2,4 ms [Mildenberger15]. Cette valeur a été estimée par la mesure, en fonction du temps, du rayonnement gamma prompt de capture neutronique induit dans un fût de 200 L contenant une matrice béton (fer du fût et composants de la matrice béton) à la suite d'une impulsion du générateur de neutrons.

## IV.2. Calcul du taux de fission

Comme dans le cas de petits échantillons (cf. chapitre II), afin de prendre en compte les effets d'atténuation neutronique et gamma par la matrice (béton ou bitume), le fût a été décomposé en 24 sous cellules comme illustré en Figure 49. En hauteur, le fût est décomposé en trois parties appelées pB, pI et pH (Basse, Intermédiaire et Haute), chacune divisée en sous cellules de rayons 10 cm, 18 cm, 24 cm, 25 cm, 26 cm, 27 cm, 28 cm et 29 cm.

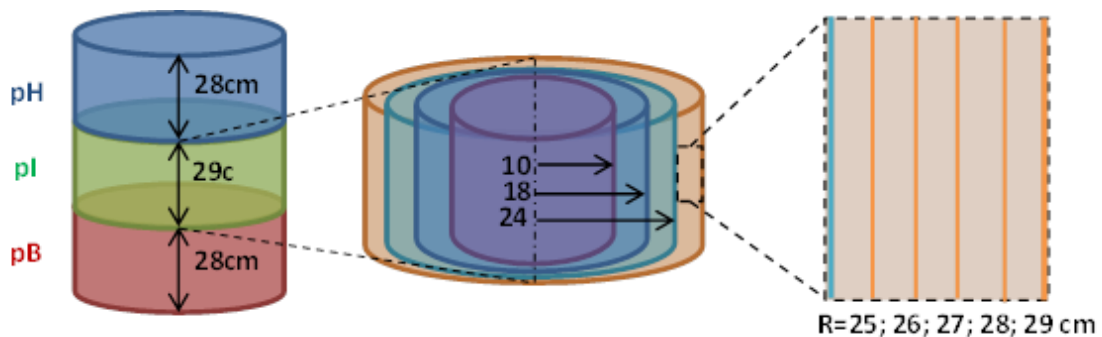


Figure 49. Segmentation du modèle MCNP du fût de 225 L.

Le taux de fission pour 10 g d'isotope  $^{235}\text{U}$  ou  $^{239}\text{Pu}$  distribué de manière homogène dans les matrices bitume et béton est alors calculé dans chacune des sous cellules à l'aide de l'estimateur de flux F4 convolué avec les sections efficaces de fission correspondantes en utilisant la carte FM4. Les valeurs calculées, normalisées par unité de volume et par neutron source, sont multipliées par l'émission neutronique maximale du générateur GENIE16 (*i.e.*  $2 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$ ). Les résultats sont représentés en Figure 50. Afin de quantifier les phénomènes d'autoprotection ou de multiplication neutronique, les mêmes résultats sont également présentés pour 1 g de matière fissile ( $^{235}\text{U}$  ou  $^{239}\text{Pu}$ ) distribuée de manière homogène dans la matrice bitume (voir Figure 50). On observe que les taux de fissions calculées sont 10 fois inférieurs à ceux obtenus pour 10 g d'isotopes fissile, montrant que leur distribution homogène dans la matrice du fût de 225 L rend les phénomènes d'autoprotection et de multiplication neutronique négligeables dans le domaine de concentration étudié.



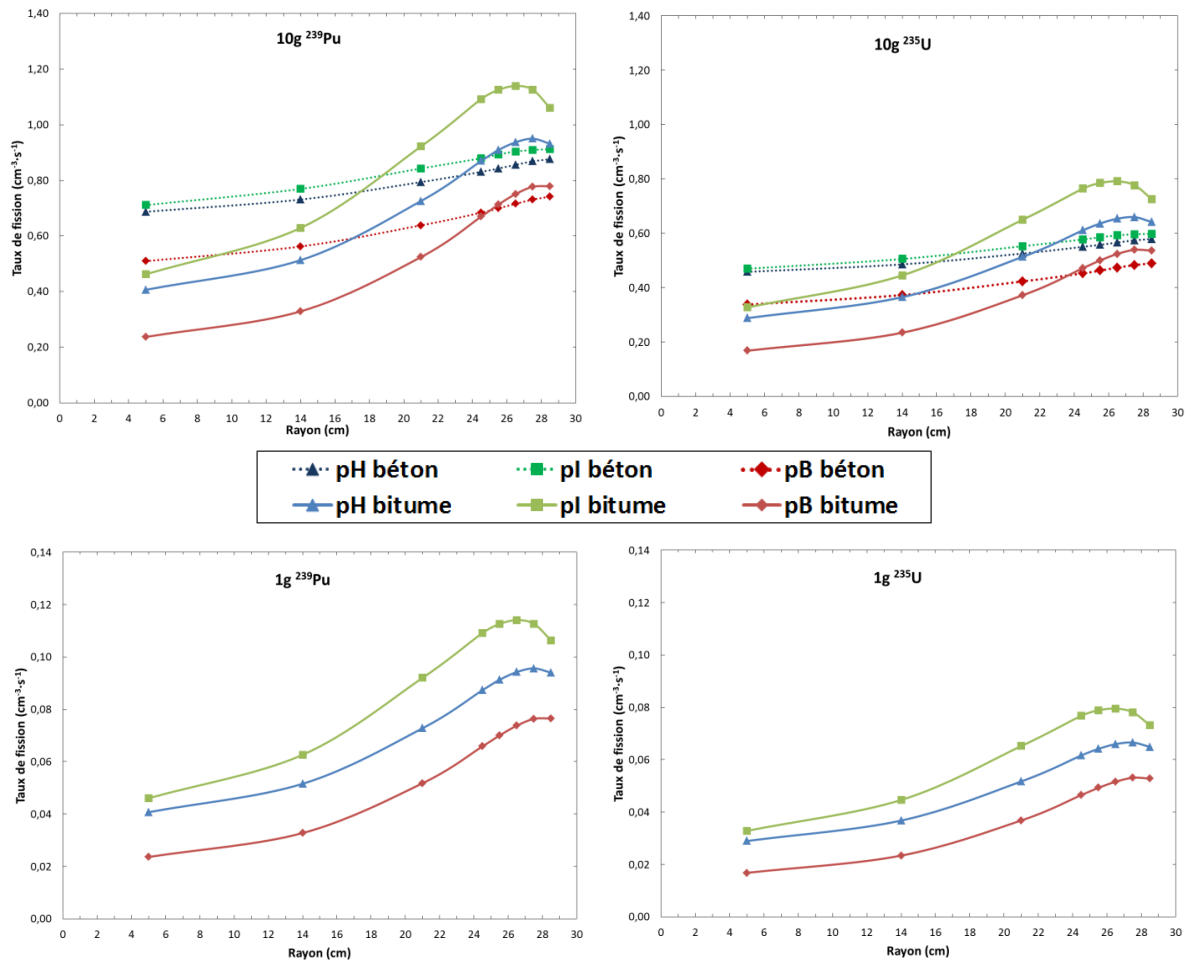


Figure 50. Taux de fission volumiques ( $\text{cm}^{-3}\cdot\text{s}^{-1}$ ) calculés dans chacun des sous volumes de la Figure 49, pour 10 g (en haut), et 1 g (en bas), d'isotopes  $^{239}\text{Pu}$  (à gauche) et  $^{235}\text{U}$  (à droite) répartis de façon homogène dans une matrice bitume ou béton (pour 10 g uniquement).

On observe une nette différence entre les taux de fission calculés dans la partie haute (pH) et basse (pB) des colis de déchets, due en partie à une dissymétrie verticale du générateur de neutrons par rapport au milieu du fût (4,4 cm). En effet, comme on peut le constater sur la Figure 51 reprenant le cas d'une masse de 10 g d'isotope  $^{239}\text{Pu}$  distribué de manière homogène dans une matrice bitume, mais où le fût de 225 L a été surélevé dans la simulation de manière à le centrer par rapport à la cible du générateur (sources de neutrons), l'écart entre les taux de fissions des parties haute et basse du fût est fortement réduit. Le reste de la différence de taux de fission entre ces deux zones provient de la dissymétrie entre les parties haute et basse de la cellule MEDINA, notamment au niveau des matériaux constituant le support du fût (table tournante, moteur) et le toit de la cellule.

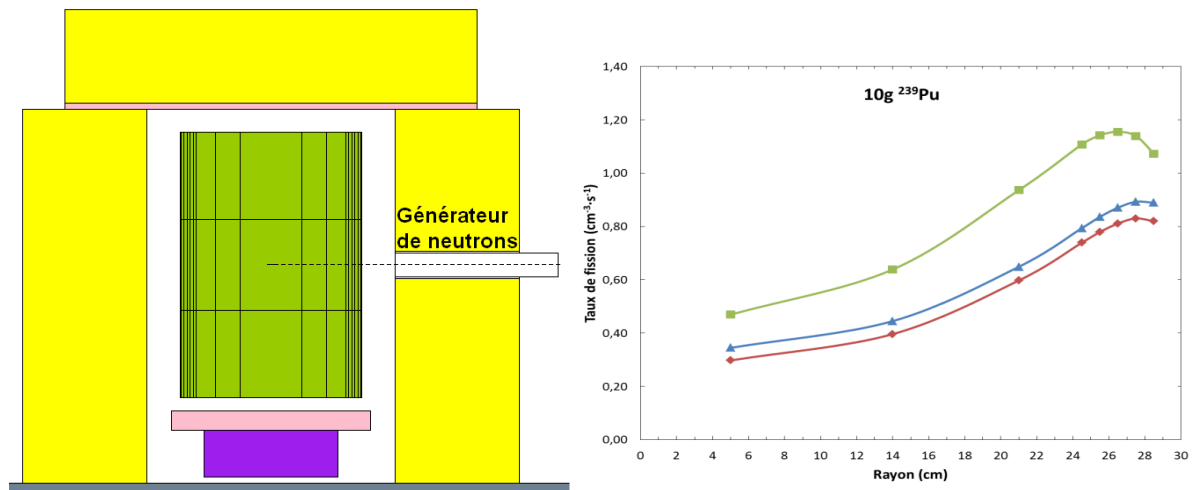


Figure 51. Modèle MCNP de la cellule MEDINA avec un fût de 225 L légèrement surélevé pour être centré par rapport au générateur de neutrons, et taux de fission par unité de volume dans chaque sous segment correspondant (pour 10 g d'isotope <sup>239</sup>Pu dans la matrice bitume).

Finalement, l'allure générale du taux de fission en fonction du rayon dans le colis est principalement due aux effets de matrice et plus particulièrement à leur teneur en hydrogène. En effet, la matrice bitume, qui contient une fraction massique d'hydrogène d'environ 6 %, représente un milieu efficace pour modérer les neutrons, augmentant ainsi la probabilité de fission en périphérie. Cependant, dans la profondeur, l'absorption des neutrons thermiques par l'hydrogène induit une diminution du taux de fission. Dans le cas du béton, où l'hydrogène ne présente qu'une fraction massique de 1,4 %, le taux de fission est alors moins dépendant de la profondeur.

### IV.3. Calcul du signal des rayonnements gamma retardés

Pour la seconde étape de calcul, le colis de déchets radioactifs est défini comme une source gamma, chaque sous cellule k émettant un rayonnement gamma d'intensité égale au produit  $R_f^{MEDINA}(k) \times N_{\gamma}^{REGAIN}(E_{\gamma})$ , où  $R_f^{MEDINA}(k)$  représente le taux de fission de la sous cellule k par neutron source (résultat de la première étape) et  $N_{\gamma}^{REGAIN}(E_{\gamma})$  le rendement d'émission de la raie gamma retardée d'énergie  $E_{\gamma}$  (Tableau 9). Le taux de fission est calculé lors de la première étape à partir de l'équation (16) :

$$R_f^{MEDINA}(k) = (F4 * FM4)_k \times V_k \quad (16)$$

Avec

$V_k$  : volume de la sous cellule k (cm<sup>3</sup>),

$(F4 * FM4)_k$  : taux de réaction volumique (en cm<sup>-3</sup> par neutron source) calculé par MCNP pour la sous cellule k.

Le comptage du signal utile (raies gamma d'intérêt) est alors déterminé à l'aide de l'estimateur F8 (dépôt d'énergie dans le cristal germanium) à partir de l'équation (17) :

$$S^{MEDINA}(E_\gamma) = F8(E_\gamma) \times EN_{G16}^{MEDINA} \times T_i \quad (17)$$

Avec

$F8(E_\gamma)$  : résultat de l'estimateur MCNP F8,

$EN_{G16}^{MEDINA}$  : émission neutronique maximale du générateur ( $2 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$ ),

$T_i$  : temps total de mesure (7200 s pour les isotopes à vie courte, 6300s, 18900 s ou 46800 s selon les isotopes à vie longue).

Les résultats obtenus pour chacune des énergies gamma sélectionnées et normalisés à la masse d'isotope fissile, sont représentés pour les deux matrices bitume et béton en Figure 52. L'incertitude élevée pour certaines raies provient principalement de la faible statistique de mesure des rayonnements gamma retardés de fission dans la cellule REGAIN, les incertitudes statistiques de simulation étant inférieures à 1 %.

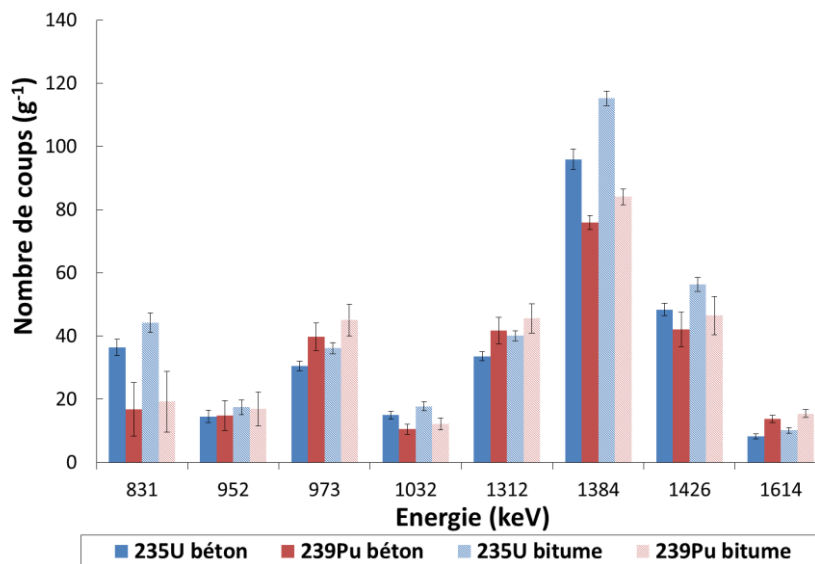


Figure 52. Signal gamma retardé par gramme d'isotope fissile ( $^{235}\text{U}$  ou  $^{239}\text{Pu}$ ) calculé pour la matrice bitume et béton avec une émission du générateur de neutrons de  $2 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$  et une irradiation pulsée de 7200 s (raies gamma à 831, 952, 973, 1312 et 1426 keV), suivie par des mesures de 6300 s, 48600 s, et 18900 s après irradiation pour les raies gamma à 1032, 1384 et 1684 keV.

Les signaux attendus sont au mieux de 120 coups par gramme de matière fissile ( $^{235}\text{U}$  ou  $^{239}\text{Pu}$ ) pour chacune des raies gamma retardées. Des signaux équivalents sont observés pour les matrices béton et bitume. Dans le cas des colis de déchets réels, la masse d'isotope fissile attendue est généralement d'environ quelques grammes, la statistique de comptage du rayonnement gamma retardé de fission sera donc très faible. De plus, une grande majorité des déchets radioactifs bitumés, qui font partie des déchets de moyenne activité à vie longue (MAVL, voir chapitre I), présente une forte activité en  $^{137}\text{Cs}$ . Si l'on considère une activité de 1 TBq [ANDRA15] pour ce radioélément, répartie de manière homogène dans un fût d'enrobés bitumineux de 225 L, le taux de comptage induit dans le détecteur GeHP d'efficacité relative 105 % sera d'environ  $10^8 \text{ s}^{-1}$ , produisant une saturation de l'électronique conventionnelle de spectrométrie gamma. Dans ce cas, il serait donc

nécessaire de modifier en profondeur la cellule MEDINA (cristal de germanium plus petit, collimateur, écrans) afin de réduire ce taux de comptage de l'ordre d'un facteur 1000, réduisant d'autant le signal utile de rayonnement gamma retardé de fission et le rendant finalement impossible à mesurer. Une solution pour améliorer le signal mesuré serait d'utiliser un flux de neutron interrogateur plus important comme exposé par la suite. Cependant, cela ne sera pas suffisant pour appliquer la méthode à des colis de déchets présentant une activité gamma si élevée.

La détection du rayonnement gamma retardé de fission reste envisageable dans le cas de déchets bitumés de moindre activité, *i.e.* de l'ordre du GBq de  $^{137}\text{Cs}$ , mais ils ne représentent pas la majorité des colis de déchets de ce type produits en France. On notera également que la limite de détection atteinte par la méthode de mesure des neutrons prompts et retardés de fission, décrite au chapitre I, est inférieure au gramme de plutonium pour 20 min de mesure [Perot04]. La détection des rayonnements gamma retardés de fission ne sera donc pas retenue pour le cas de ces colis de déchets bitumés produits en France.

Néanmoins, la méthode reste intéressante pour le cas des colis de déchets bétonnés peu irradiant, notamment les fûts produits en Allemagne qui présentent une émission gamma plus faible. En effet, ces derniers présentent généralement une activité en  $^{137}\text{Cs}$  de l'ordre de  $10^8$  Bq qui, répartie de manière homogène dans une fût de 225 L, induit un taux de comptage de l'ordre de  $10^4 \text{ s}^{-1}$  pouvant être traité par l'électronique usuelle de spectrométrie gamma sans ajout de collimateur ou d'écrans supplémentaires.

#### IV.4. Limites de détection

Pour pouvoir calculer les limites de détection des raies gamma retardés d'intérêt, il est nécessaire de connaître le bruit de fond actif de la cellule MEDINA. Cependant l'utilisation de MCNP ne permettrait pas de déterminer de manière fiable le bruit de fond Compton. En effet, un grand nombre d'éléments présents dans la cellule (certains sous forme de traces de teneur mal connue) contribuent à la formation de celui-ci. C'est pourquoi il a été choisi de mesurer le bruit de fond de la cellule MEDINA à partir d'un fût béton maquette utilisé dans les références [Mauerhofer14, 15, Mildenberger15]. Ce colis maquette possède un volume de 200 L rempli à l'aide de 76 cylindres de béton de hauteur 20 cm et de diamètre 11 cm, comme illustré en Figure 53.

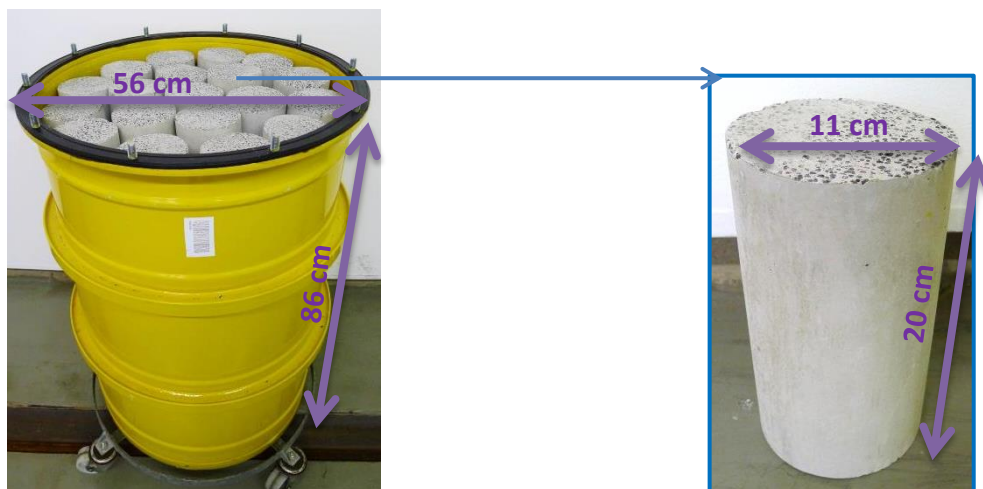


Figure 53. Colis maquette d'un fût bétonné de 200 L, et agrandissement d'un des cylindres de béton utilisés.

La composition de ces cylindres est identique à celle des bétons rapportée dans le Tableau 12. La matrice béton possède alors une densité apparente de 1,02, légèrement inférieure à la densité de la matrice béton mentionnée dans les paragraphes précédents (1,38). Le colis maquette a été placé dans la cellule MEDINA et irradié selon le chronogramme décrit précédemment dans ce chapitre (Figure 40). La tension du générateur de neutron est fixée à 85 kV, et le courant à 40  $\mu\text{A}$ , résultant en une émission neutronique moyenne de l'ordre de  $(7,18 \pm 0,93) \times 10^7 \text{ s}^{-1}$  [Havenith15]. Les mesures entre les impulsions et après irradiation ont également été réalisées en ajoutant des sources de rayonnement gamma ponctuelles de  $^{60}\text{Co}$  et  $^{137}\text{Cs}$  afin d'étudier l'influence de l'émission de rayonnements gamma par les déchets radioactifs dans les colis réels. Ces sources gamma, d'activité respective 206 kBq et 344 kBq, ont été placées à 10 cm à l'arrière du détecteur GeHP, à l'extérieur de la cellule, voir Figure 54.



Figure 54. Positionnement des sources gamma ponctuelles ( $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ) par rapport au détecteur GeHP.

Celles-ci induisent un taux de comptage correspondant à une activité équivalente à celle d'une contamination homogène en  $^{60}\text{Co}$  et  $^{137}\text{Cs}$  dans une matrice béton respectivement égale à 7 et 10 MBq. Les spectres associés (avec et sans sources gamma) sont représentés en Figure 55 pour les mesures entre les impulsions du générateur de neutron, et en Figure 56 pour l'acquisition après irradiation de 18000 s. L'ensemble des mesures ont été réalisées en mode ZDT (*Zero Dead Time*, voir au paragraphe II.3 du chapitre I) du logiciel GammaVision-32 (ORTEC).

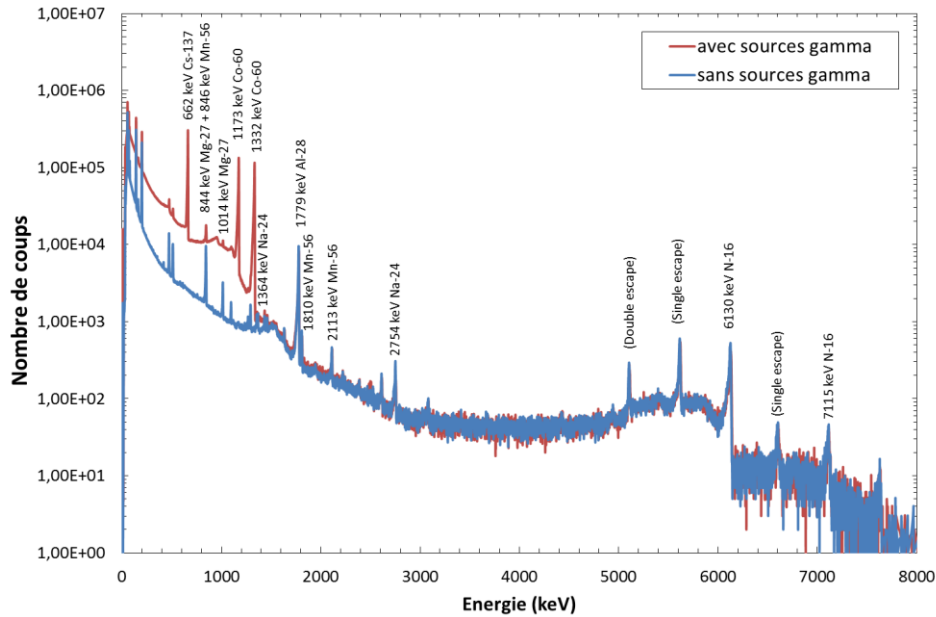


Figure 55. Spectres de bruit de fond actif de la cellule MEDINA entre les impulsions neutroniques, mesuré avec ou sans sources de  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{60}\text{Co}$  placées à proximité du détecteur.

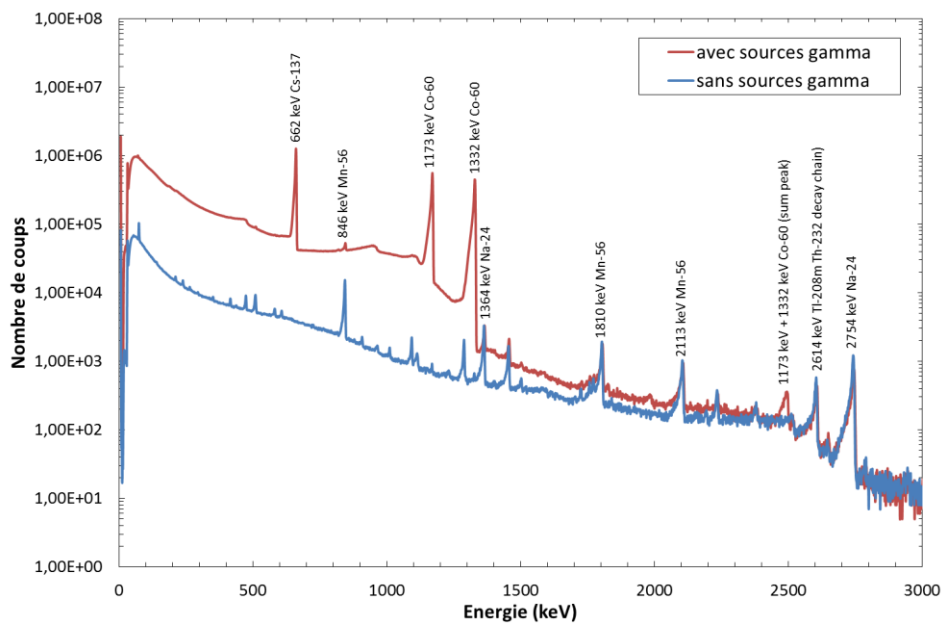


Figure 56. Spectres de bruit de fond actif de la cellule MEDINA mesuré pendant 18000 s après irradiation, avec ou sans sources de  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{60}\text{Co}$  placées à proximité du détecteur.

A partir de ces mesures de bruit de fond (avec et sans sources gamma), les limites de détection,  $LD(E_\gamma)$ , sont estimées suivant l'équation (18) [GTN5], correspondant à un risque de non détection  $\alpha$  de 2,5 % (et un risque de fausse alarme  $\beta$  de 2,5 % pour la définition du seuil de détection).

$$LD(E_\gamma) = 3,92 \times \sqrt{2 \times B(E_\gamma)} \quad (18)$$

où  $B(E_\gamma)$  est l'intégrale du bruit de fond sous le pic attendu à l'énergie  $E_\gamma$ , estimée sur une région d'intérêt en énergie égale à 2,52 fois la largeur à mi-hauteur (LTMH) du pic  $E_\gamma$ . Cette largeur correspond à un intervalle de  $6\sigma$ ,  $\sigma$  étant l'écart type d'un pic gaussien.

Afin de déterminer la limite de détection des isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$  distribués de manière homogène dans un fût béton de 200 L, la valeur de limite de détection obtenue à partir de l'équation (18) exprimée en nombre de coups, est alors divisée par la sensibilité calculée précédemment (taux de comptage par unité de masse fissile). On remarquera que pour cette estimation, l'intensité du bruit de fond correspondant à une émission du générateur de neutron de  $2 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$  a été extrapolée à partir du bruit de fond mesuré avec une émission neutronique de  $7,18 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ . L'ensemble des limites de détection obtenues sont résumées dans le Tableau 13.

**Tableau 13. Limites de détection (en grammes) des isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$ , pour une distribution homogène dans un fût bétonné de 200 L, une émission du générateur de neutron de  $2 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$  et le chronogramme d'acquisition de la Figure 40. Les incertitudes relatives données entre parenthèses prennent en compte l'incertitude sur l'émission du générateur de neutrons et celle sur les rendements d'émission des rayonnements gamma retardés mesuré dans REGAIN. Les isotopes mesurés après irradiation sont repérés sur fond grisé.**

E (keV)	Sans sources $^{60}\text{Co}$ et $^{137}\text{Cs}$		Avec sources $^{60}\text{Co}$ et $^{137}\text{Cs}$	
	m( $^{239}\text{Pu}$ ) (g)	m( $^{235}\text{U}$ ) (g)	m( $^{239}\text{Pu}$ ) (g)	m( $^{235}\text{U}$ ) (g)
830	$7,29 \times 10^1$ (50 %)	$3,37 \times 10^1$ (7 %)	$1,68 \times 10^2$ (50 %)	$7,77 \times 10^1$ (7 %)
952	$6,82 \times 10^1$ (32 %)	$6,99 \times 10^1$ (13 %)	$2,10 \times 10^2$ (32 %)	$2,15 \times 10^2$ (13 %)
973	$2,50 \times 10^1$ (11 %)	$3,27 \times 10^1$ (5 %)	$7,23 \times 10^1$ (11 %)	$9,46 \times 10^1$ (5 %)
1032	$5,39 \times 10^1$ (15 %)	$3,79 \times 10^1$ (8 %)	$3,13 \times 10^2$ (15 %)	$2,20 \times 10^2$ (8 %)
1312	$1,99 \times 10^1$ (10 %)	$2,47 \times 10^1$ (4 %)	$7,40 \times 10^1$ (10 %)	$9,18 \times 10^1$ (4 %)
1384	$1,45 \times 10^1$ (3 %)	$1,14 \times 10^1$ (2 %)	$2,62 \times 10^1$ (3 %)	$2,07 \times 10^1$ (2 %)
1427	$2,19 \times 10^1$ (13 %)	$1,90 \times 10^1$ (8 %)	$2,35 \times 10^1$ (13 %)	$2,04 \times 10^1$ (4 %)
1614	$4,66 \times 10^1$ (8 %)	$7,64 \times 10^1$ (10 %)	$6,01 \times 10^1$ (8 %)	$9,86 \times 10^1$ (10 %)

Suivant la raie gamma considérée, et la présence ou non d'émetteur gamma parasite dans le colis de déchets ( $^{60}\text{Co}$  et  $^{137}\text{Cs}$ ), on obtient des limites de détection comprises entre 10 et 310 g. En principe, la présence des sources gamma ponctuelles ne devrait impacter que les limites de détection pour le rayonnement gamma retardé à des énergies plus faibles que celles de l'isotope  $^{60}\text{Co}$  (1173 et 1332 keV). Toutefois, comme on le voit clairement sur la Figure 56, les sources de  $^{60}\text{Co}$  et  $^{137}\text{Cs}$  induisent des empilements d'impulsions significatives. En effet, afin d'avoir un taux de comptage équivalent à celui induit par l'activité gamma d'un colis réel, les sources gamma ont été positionnées très près du cristal de germanium, ce qui entraîne des empilements responsables de coups dans le spectre au-delà de 1332 keV, comme on peut le constater sur la Figure 55 et la Figure 56, résultant en une dégradation des valeurs de limites de détection jusqu'à environ 2500 keV.

De plus, une traîne est observée sur le flanc gauche des raies gamma. Celle de la raie à 1332 keV induit une augmentation significative du bruit de fond sous le pic gamma retardé à 1312 keV et donc aussi de la limite de détection associée. Ce phénomène est dû à la dégradation du cristal de germanium soumis au flux de neutrons rapides du générateur.

Les limites de détection obtenues ne sont pas très bonnes, mais les performances de la méthode peuvent être améliorées en optimisant l'écrantage du détecteur comme abordé dans le prochain chapitre [Nicol16a] et en utilisant un générateur de neutrons de plus grande émission [SODERN, ADELPHI]. Une augmentation de l'émission neutronique d'un facteur 10 à 100 permettrait notamment d'améliorer les limites de détection d'un facteur 3 à 10. Une autre possibilité pour produire un flux de neutrons interrogateur plus important serait d'utiliser un accélérateur linéaire d'électrons (LINAC) et une cible de conversion adaptée [Sari12]. En optimisant l'ensemble des paramètres, les valeurs de limite de détection pourraient *a priori* être ramenées à quelques grammes de matière fissile. On pourra noter que, dans le cas de l'Allemagne, les colis de déchets radioactifs sont classés comme combustible nucléaire si un fût de 200 L contient plus de 15 g de matière fissile [OCDE02]. La méthode peut alors être envisagée comme moyen de contrôle de cette limitation. Même si la méthode de mesure des neutrons prompts et retardés de fission évoquée au paragraphe III.3 [Perot04] permet d'atteindre des limites de détection bien meilleures (inférieure à 1 g de matière fissile pour 20 min de mesure), il reste très intéressant de pouvoir à la fois mesurer des toxiques chimiques et de la matière fissile dans une seule cellule d'irradiation neutronique pulsée telle que MEDINA. De plus les limites de détection peuvent encore être améliorées par mesure des raies gamma retardées à plus haute énergie afin de s'affranchir du bruit de fond passif du colis de déchets, ainsi que du bruit de fond actif dû à l'activation des matériaux non nucléaires [Carrel11a].

Par ailleurs, au cours de ces travaux de thèse, une seconde approche de détermination des limites de détection a été étudiée, basée sur la détermination du flux neutronique à partir du rayonnement de capture associé au fer constituant l'enveloppe du fût. Cette dernière est exposée en annexe 3 et montre une bonne concordance avec les valeurs exposées dans ce paragraphe.

## IV.5. Incertitude de répartition de la matière fissile

Les calculs présentés précédemment ont été réalisés sur la base d'une répartition homogène de la matière fissile dans un fût de 225 L. Afin d'étudier l'incertitude due à une possible distribution non homogène des isotopes fissiles dans la matrice du colis de déchets, de nouvelles simulations ont été réalisées en plaçant ceux-ci au centre ou en périphérie du fût. Une telle hétérogénéité n'est possible que dans le cas des colis bétonnés, le processus industriel pour les colis bitumés garantissant leur homogénéité. Toutefois, le cas des enrobés bitumineux a quand même été étudié comme cas d'école pénalisant vis-à-vis de cet effet.

Pour cette nouvelle étude, le taux de fission a été calculé à partir de l'estimation du flux neutronique au centre du fût (estimateur MCNP F5 ponctuel), ou en périphérie (estimateur MCNP F5 annulaire à mi-hauteur du fût), convolué avec les sections efficaces de fission des isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$  à l'aide de la carte FM5. Ensuite, comme précédemment, l'émission des rayonnements gamma retardés de fission est définie par le produit  $R_f^{\text{MEDINA}} \times N_\gamma^{\text{REGAIN}}(E_\gamma)$  et simulé depuis le centre ou la périphérie (même anneau que celui utilisé pour calculer le taux de fission du fût). Le taux de comptage gamma est alors déterminé avec l'estimateur MCNP de dépôt d'énergie F8 dans le cristal de germanium. On remarquera qu'avec une telle méthode (détecteur ponctuel ou annulaire), l'effet d'autoprotection neutronique n'est pas pris en compte. Comme pour les mesures d'échantillons dans REGAIN, celui-ci peut s'avérer significatif en présence d'un point chaud concentrant quelques grammes de matière fissile.



La Figure 57 montre les différents signaux obtenus selon les trois distributions de la matière fissile (en périphérie, homogène et au centre) dans la matrice bitume de densité 1,30. Comme le laissait présager la distribution des taux de fission représentée en Figure 50, le signal mesuré dans le cas favorable où la matière fissile se trouve en périphérie est largement supérieur aux cas où celle-ci se trouve au centre (environ un facteur 16).

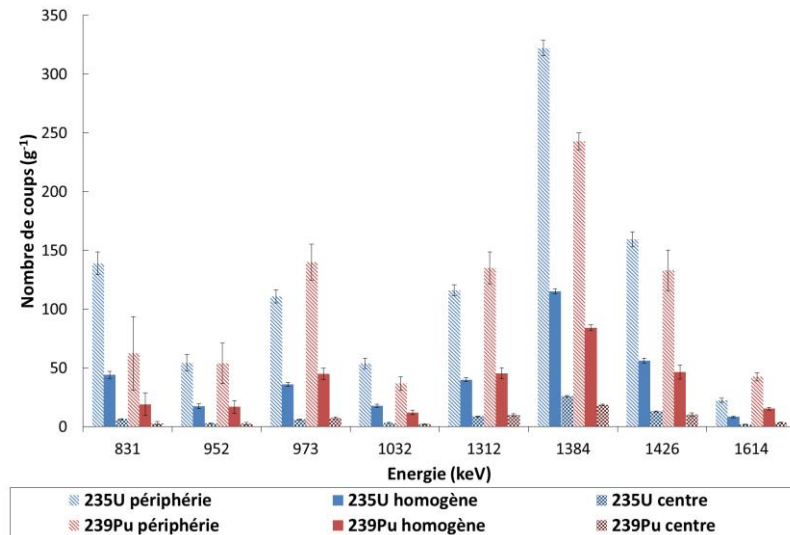


Figure 57. Signal de gamma retardés pour trois distributions d'isotopes fissiles dans un colis de déchets bitumé (en périphérie, homogène et au centre).

La Figure 58 montre que l'effet de matrice est moindre dans le cas d'une matrice béton avec un facteur d'environ 8 entre les deux cas extrêmes de distribution de la masse fissile (centre et périphérie). Ceci est principalement dû à la plus faible concentration en hydrogène du béton induisant une moindre atténuation du flux neutronique en profondeur dans la matrice que dans le cas du bitume. Toutefois, cet effet de localisation de la matière fissile peut introduire une forte incertitude dans le cas de colis de déchets hétérogènes. Par exemple, si l'hypothèse de référence pour la quantification des isotopes fissiles est la distribution homogène, les résultats exposés en Figure 58 montrent que l'intervalle de confiance sur la mesure sera de l'ordre de [-50 % ; +300 %] pour prendre en compte la possible hétérogénéité de leur distribution dans la matrice béton. Dans le cas où l'on souhaiterait seulement déterminer le rapport  $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ , il sera nécessaire d'émettre l'hypothèse que les isotopes fissile se trouvent tous au même endroit et de sélectionner deux pics gamma retardés proche en énergie pour réduire l'incertitude due aux effets de matrice.

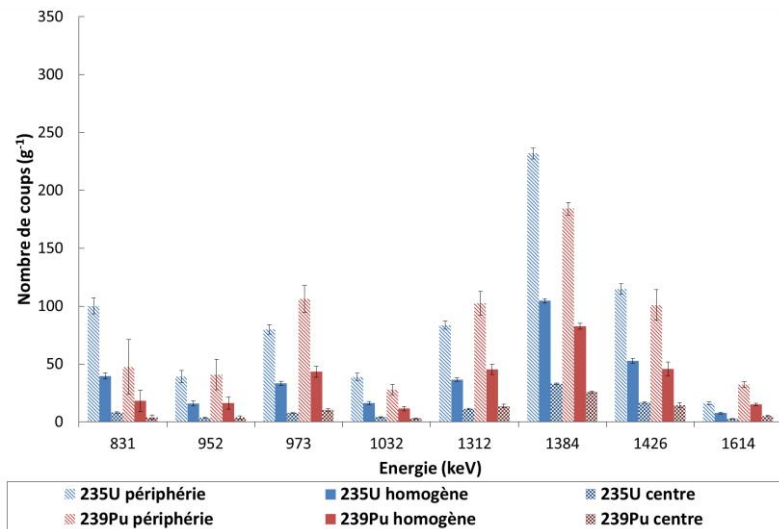


Figure 58. Signal de gamma retardés pour trois distributions d’isotopes fissiles dans un colis de déchets bétonné (en périphérie, homogène et au centre).

Utiliser les rayonnements gamma retardés de haute énergie, typiquement au-delà de 3 MeV, permettrait également de réduire les effets de matrice en limitant l’atténuation gamma.

## IV.6. Interférence de l’isotope $^{238}\text{U}$

L’ensemble des résultats précédents ont été obtenus sur la base des seuls isotopes fissiles  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$ . Dans le cas du plutonium, l’isotope  $^{239}\text{Pu}$  est très souvent majoritaire à plus de 50 % et l’isotope fissile  $^{241}\text{Pu}$  très minoritaire. La majorité des fissions se produiront donc bien sur l’isotope  $^{239}\text{Pu}$ . Pour l’uranium, les deux principaux isotopes présents sont  $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$ . Bien que seul l’isotope  $^{235}\text{U}$  soit fissile par des neutrons thermiques, l’utilisation d’un générateur de neutron de 14 MeV peut induire des fissions rapides et notamment sur l’isotope  $^{238}\text{U}$  (voir courbes de section efficace de fission, Figure 59) qui représente généralement plus de 95 % de la masse d’uranium (appauvri, naturel ou enrichi à des fins de production d’électricité). Nous avons donc cherché à savoir dans quelle mesure cette présence de l’isotope  $^{238}\text{U}$  contribue au signal des rayonnements gamma retardés.

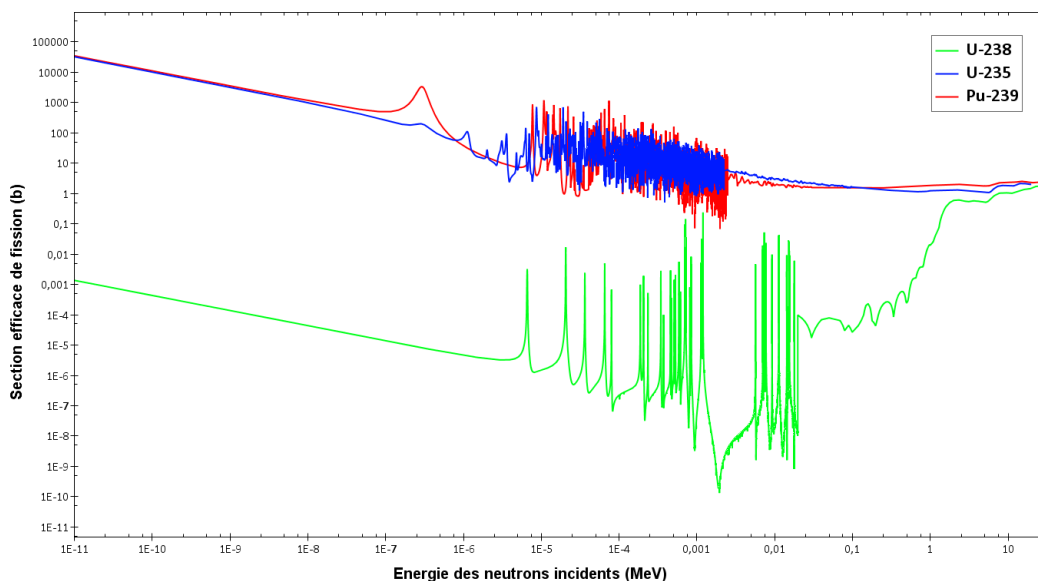


Figure 59. Section efficace de fission des isotopes  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$  [JANIS12].

De nouvelles simulations ont donc été réalisées en répartissant de manière homogène dans les matrices bitume et béton 10 g d'isotopes  $^{235}\text{U}$  et la quantité d'isotope  $^{238}\text{U}$  associée, avec trois compositions isotopiques :

- Uranium légèrement enrichi : 1,5 %  $^{235}\text{U}$  et 98,5 %  $^{238}\text{U}$
- Uranium naturel : 0,7 %  $^{235}\text{U}$  et 99,3 %  $^{238}\text{U}$
- Uranium appauvri : 0,2 %  $^{235}\text{U}$  et 99,8 %  $^{238}\text{U}$

L'évolution du rapport entre les taux de fission de l'isotope  $^{238}\text{U}$  et total ( $^{238}\text{U}$  plus  $^{235}\text{U}$ ) dans chacune des 24 sous cellules de segmentation du fût de 225 L décrites au paragraphe III.2, dans le cas des matrices béton et bitume, est représentée en Figure 60.

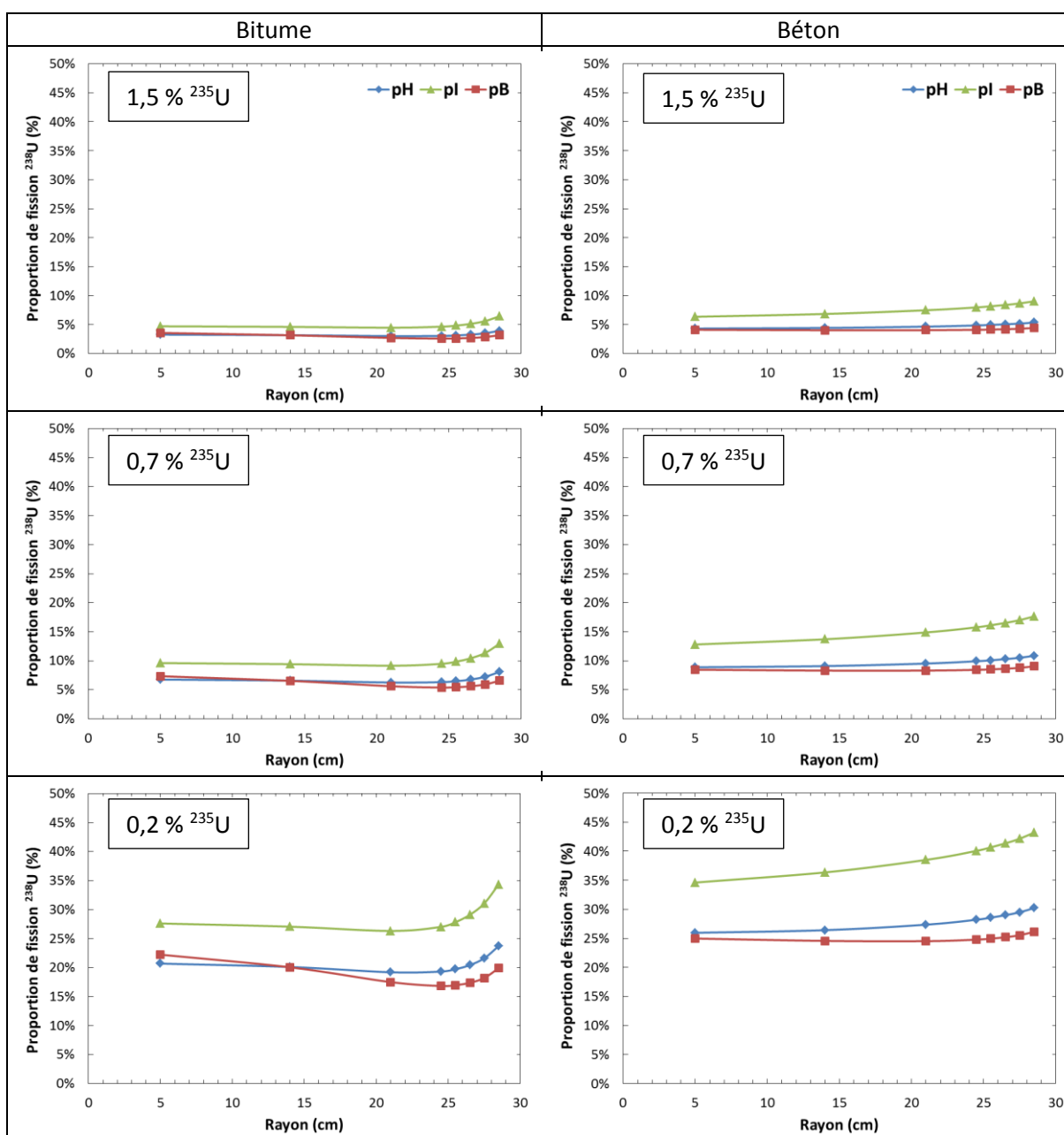


Figure 60. Variation des taux de fission par unité de volume dans chaque sous segment du colis de déchets de 225 L (cf. Figure 49), en fonction de la proportion d'isotopes  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ .

Ces résultats montrent que le plus grand pouvoir modérateur de la matrice bitume par rapport à la matrice béton limite en partie l'interférence due aux fissions rapides de l'isotope  $^{238}\text{U}$ . De plus, une proportion plus élevée de ces dernières est observée pour la partie intermédiaire du colis, par rapport aux régions (haute et basse) en raison de la position de cette zone en vue directe du générateur de neutrons. Dans le cas d'uranium naturel ou enrichi à 1.5 %, moins de 15 % du nombre total de fissions provient de l'isotope  $^{238}\text{U}$ . Cette proportion dépasse 30 % dans le cas d'uranium appauvri dans la matrice béton qui est moins modératrice. De plus, du fait de la thermalisation des neutrons dans la matrice, la proportion de fissions de l'isotope  $^{238}\text{U}$  est plus importante en périphérie du colis (jusqu'à plus de 40 % dans le cas le plus pénalisant), zone présentant également la meilleure efficacité de détection. Une attention particulière devra donc être portée quant à la détermination de la contribution des fissions rapides de l'isotope  $^{238}\text{U}$ .

Au regard des rendements cumulés de fission représentés en Figure 61, on constate que la fission rapide de l'isotope  $^{238}\text{U}$  produit une plus grande quantité d'isotopes avec un nombre de masse compris entre 100 et 130 que la fission thermique de l'isotope  $^{235}\text{U}$ . Cette différence est liée à l'énergie des neutrons incidents, la fission rapide de l'isotope  $^{235}\text{U}$  ayant la même allure que celle de l'isotope  $^{238}\text{U}$  [JEFF05]. Toutefois, la majorité des fissions induites par des neutrons rapides provient de l'isotope  $^{238}\text{U}$ . En effet, bien que les deux isotopes de l'uranium aient des sections efficaces de fission entre 1 et 14 MeV similaires (2,06 b et 1,17 b à 14 MeV, respectivement pour  $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$  [JEFF05]), la plus grande quantité de noyaux  $^{238}\text{U}$  résulte en un nombre de fissions induite par des neutrons rapides bien plus grand pour cet isotope.

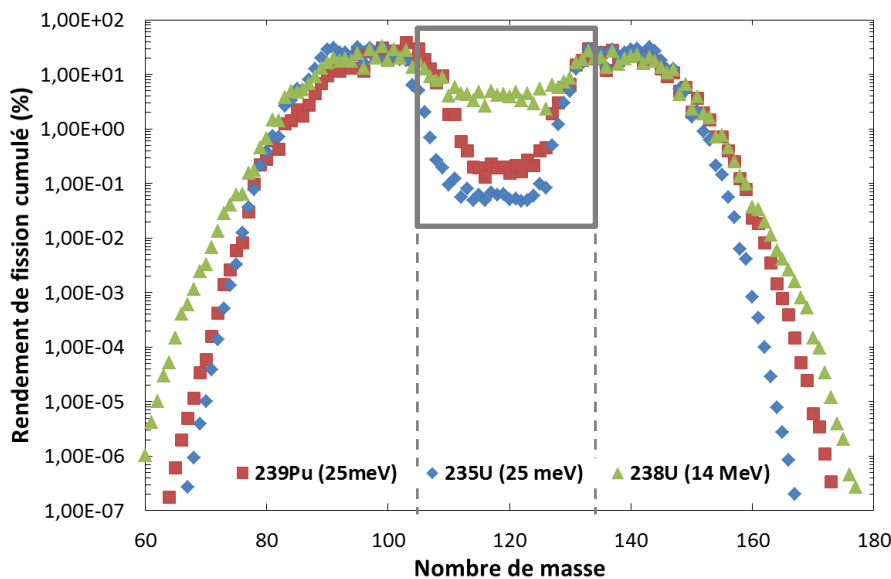


Figure 61. Rendements de production cumulés des produits de fission thermique de l'isotope  $^{235}\text{U}$  et de fission rapide de l'isotope  $^{238}\text{U}$  [JEFF05].

La Figure 23 montre qu'à partir de l'analyse des différents rayonnements gamma retardés issus des produits de fission de la région des nombres de masse compris entre 100 et 130, il est *a priori* possible de déterminer les masses relatives des trois isotopes  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$ . La limitation principale réside ici dans la différence de localisation des fissions rapides (plutôt en surface) et des fissions thermiques (plus en profondeur), résultant en des contributions différentes au signal

retardés. En l'absence de donnée sur la répartition des isotopes dans la matrice, l'hypothèse d'homogénéité peut entraîner ici une incertitude encore bien plus significative qu'en présence seul d'isotopes fissiles.

On pourra également mentionner que l'isotope  $^{238}\text{U}$  émet un rayonnement gamma prompt de capture radiative à 4,06 MeV [AIEA07] qui permettrait également de quantifier cet isotope et d'en déduire sa contribution au signal retardés à l'aide de simulations numériques.

## V. Conclusion

La mesure des rayonnements gamma retardés de fission à partir de l'irradiation d'échantillons d'uranium et de plutonium dans la cellule REGAIN du CEA Cadarache a permis d'identifier les raies gamma intéressantes pour la caractérisation des isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$ . Les rendements d'émission de ces rayonnements gamma retardés de fission, déterminés à partir des mesures expérimentales, sont cohérents avec ceux calculés à partir de données tabulées. Les écarts les plus grands observés sur certaines raies gamma sont dus principalement aux incertitudes de mesures : détermination de la surface nette des pics de faible amplitude ou en interférence avec d'autres raies. Néanmoins, les ratios entre rendement mesurés et tabulés restent dans une plage de 0,7 à 1,55 pour toutes les raies d'intérêt étudiées, associées aux isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$ .

La simulation MCNP d'une irradiation pulsée de 7200 s d'un colis de déchets radioactifs de 225 L contenant une matrice bitumée, ou bétonnée, dans la cellule MEDINA du FZJ, montre que le signal des rayonnements gamma retardés de fission n'est que de quelques dizaines de coups par gramme d'isotope  $^{235}\text{U}$  ou  $^{239}\text{Pu}$ . La principale limitation dans le cas des déchets bitumés vient du haut niveau d'activité gamma du colis, produisant une saturation de l'électronique de spectrométrie gamma haute résolution (pour détecteur GeHP) en l'absence de collimateur et d'écran supplémentaire. L'utilisation de ces derniers réduirait d'autant le signal utile, le rendant finalement indétectable. Toutefois, la méthode reste prometteuse dans le cas de colis de déchets moins irradiants, comme notamment les déchets bétonnés produits en Allemagne.

Le calcul de la sensibilité de détection des rayonnements gamma retardés de fission, combiné avec une mesure du bruit de fond actif d'un colis bétonné maquette dans la cellule MEDINA, a permis d'estimer des limites de détection de l'ordre de quelques dizaines de grammes d'isotopes  $^{235}\text{U}$  ou  $^{239}\text{Pu}$ . Ces limites de détection peuvent potentiellement être améliorées grâce à l'utilisation d'un générateur de neutrons possédant une émission supérieure au GENIE 16, ou encore d'un LINAC avec une source de conversion adaptée. L'optimisation de l'écrantage du détecteur, abordée dans le chapitre IV de ce mémoire, est aussi une voie d'amélioration des performances.

D'autre part, l'étude de différents cas enveloppe quant à la position de la matière fissile montre un impact très significatif pour les matrices hydrogénées comme le bitume. Bien que le phénomène soit plus modéré dans le cas de la matrice bétonnée, l'absence d'information sur la répartition de la matière fissile entraîne une incertitude significative sur sa quantification. Un moyen de réduire cette incertitude serait de mesurer les rayonnements gamma retardés émit à plus haute énergie [Carrel11a].

Enfin, la présence de l'isotope  $^{238}\text{U}$  avec l'isotope  $^{235}\text{U}$  nécessite de prendre en compte la contribution des fissions rapides. L'étude de leur contribution pour plusieurs enrichissements d'uranium a montré que cette composante n'est significative que dans le cas d'une teneur en isotope  $^{235}\text{U}$  inférieure à 0,2 %, et que celle-ci devrait pouvoir être quantifiée par adaptation des équations de mesure des rayonnements gamma retardés de fission.

En conclusion, malgré ces réserves, la méthode semble donc intéressante dans le cas de fûts ayant un niveau d'émission gamma modéré et contenant quelque dizaines de grammes de matière fissile. Pour de futurs travaux, l'utilisation des nouvelles versions de MCNP [MCNP6] et MCNPX [MCNPX260], capables de générer les rayonnements gamma retardés, permettra d'étudier plus en détails les performances de la méthode à partir des simulations numériques.



# Chapitre IV : Etude d'amélioration du blindage du détecteur de la cellule MEDINA

---

## I. Introduction

L'installation MEDINA a été développée dans l'optique de mesurer des éléments non radioactifs contenus dans des colis de déchets radioactif de 200 L en utilisant un générateur de neutrons de 14 MeV. Dans le cas d'une matrice béton, des limites de détection ont été déterminées expérimentalement pour un ensemble d'éléments recherchés en vue de l'envoi des déchets peu ou non exothermiques, produits en Allemagne, au centre de stockage radioactif KONRAD. Certains de ces éléments sont aussi représentatifs des toxiques chimiques (B, Cr, Ni, As, Se, Cd, Sb, Hg, Pb, U), des substances complexantes (Cl, ...) ou encore des espèces potentiellement agressives ou réactives (Li, Zn, ...) à caractériser en vue du stockage, en formation géologique profonde, des déchets de moyenne et haute activité à vie longue, en France [ANDRA09], voir Tableau 14 [Havenith15].

En dehors du thallium, du rubidium, du plomb et du thorium, l'ensemble des limites de détection des autres éléments, répartis de manière homogène dans un fût béton de 200 L, sont inférieures aux seuils d'acceptation pour le centre de stockage KONRAD (Allemagne) [Havenith15]. Cependant, pour la plupart de ces éléments, elles sont bien supérieures au seuil de déclaration fixé comme objectif général par l'ANDRA (France), qui est actuellement de 1 ppm pour l'ensemble des toxiques chimiques [ANDRA02]. De plus, les limites de détection de 10 à 310 g d'isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$  estimées au chapitre précédent sont proches ou supérieures au seuil de classification des colis de déchets en tant que combustible nucléaire en Allemagne (15 g). Nous allons donc chercher, à travers les travaux décrits dans ce nouveau chapitre, à abaisser les limites de détection de la cellule MEDINA en réduisant le bruit de fond au niveau du détecteur gamma.

Comme décrit précédemment, à l'exception de quelques éléments de structure en fibre de carbone, l'installation est entièrement constituée de graphite permettant la thermalisation et la réflexion des neutrons émis par le générateur. Les rayonnements gamma prompts et retardés sont alors mesurés à l'aide d'un détecteur germanium hyper pur coaxial de type n et d'efficacité relative 104 %<sup>1</sup>. Celui-ci est disposé dans un des murs de la cellule d'irradiation, avec un blindage spécifique constitué de plaques de fluorure de lithium (LiF) autour de la tête contenant le cristal de germanium et de carbonate de lithium ( $\text{Li}_2\text{CO}_3$ ) sur le devant. Ces plaques, de 3 mm d'épaisseur sont faites à partir de lithium enrichi (95 %  $^6\text{Li}$  et 5 %  $^7\text{Li}$ ) et permettent de limiter l'activation thermique des isotopes de germanium. Cependant, le détecteur est exposé à un important bruit de fond gamma produit par la capture radiative de neutrons thermiques par l'isotope  $^{12}\text{C}$  présent en très grande quantité, et par les isotopes  $^1\text{H}$  et  $^{35}\text{Cl}$  présents dans la fibre de carbone. De plus, la présence dans les spectres mesurés des raies gamma émises par les radionucléides  $^{71}\text{mGe}$  et  $^{75}\text{mGe}$  traduit l'activation du germanium par des neutrons rapides. Bien que l'utilisation d'un détecteur germanium de type n permette de limiter l'impact de ces neutrons sur la structure cristalline du détecteur, une

---

<sup>1</sup> Comme mentionné dans le chapitre I, une convention consiste à exprimer l'efficacité des détecteurs germanium par rapport celle d'un cristal scintillateur NaI(Tl) de 3"×3", dans le cas de la raie à 1332 keV d'une source de  $^{60}\text{Co}$  placée à 25 cm (égale à  $1,2 \times 10^{-3}$ ) [Knoll10].



dégradation de la résolution notable du détecteur germanium est observée après une certaine période de fonctionnement (environ 3 ans dans notre cas).

Tableau 14. Limites de détection en g et en ppm (ou en %) d'éléments répartis de façon homogène ou concentrés au centre d'une matrice béton contenue dans un fût de 200 L (251,73 kg), pour différents temps de mesure dans MEDINA [Havenith15]. Les toxiques chimiques retenus par l'ANDRA [ANDRA09] pour le stockage géologique sont repérés en gras.

Elément	Distribution homogène				Distribution concentrée au centre du fût de 200 L	
	Temps de mesure : 2000 s		Temps de mesure : 16000 s		Temps de mesure : 16000 s	
	LD (g)	LD (ppm)	LD (g)	LD (ppm)	LD (g)	LD (%)
Lithium (Li)	1085,8	4309	135,2	537	2528	1
<b>Bore (B)</b>	<b>0,1</b>	<b>0,5</b>	<b>0,02</b>	<b>0,06</b>	<b>7</b>	<b>0,003</b>
Sodium (Na)	1486,8	5900	185,4	736	605	0,24
Chlore (Cl)	20,1	80	2,5	10	177	0,07
Potassium (K)	342,3	1359	42,7	170	143	0,06
Calcium (Ca)	246,6	979	30,5	122	367	0,15
Titan (Ti)	152,1	604	18,9	75	7	0,003
Vanadium (V)	661	2624	82,5	327	1693	0,67
<b>Chrome (Cr)</b>	<b>317</b>	<b>1258</b>	<b>39,5</b>	<b>157</b>	<b>344</b>	<b>0,14</b>
Manganèse (Mn)	471,8	1873	58,9	234	1693	0,67
Cobalt (Co)	80,5	320	10,1	39	354	0,14
<b>Nickel (Ni)</b>	<b>322,2</b>	<b>1280</b>	<b>39,4</b>	<b>157</b>	<b>860</b>	<b>0,34</b>
Zinc (Zn)	1059,6	4205	132,1	524	1005	0,4
<b>Arsenic (As)</b>	<b>173,6</b>	<b>689</b>	<b>21,4</b>	<b>85</b>	<b>156</b>	<b>0,07</b>
<b>Sélénium (Se)</b>	<b>315,8</b>	<b>1254</b>	<b>39,4</b>	<b>157</b>	<b>1112</b>	<b>0,44</b>
Rubidium (Rb)	4890,2	19460	609,7	2420	2163	0,86
Strontium (Sr)	282,5	1121	35,2	140	111	0,04
Argent (Ag)	112,3	446	14	56	1314	0,52
<b>Cadmium (Cd)</b>	<b>0,7</b>	<b>2,8</b>	<b>0,085</b>	<b>0,3</b>	<b>9</b>	<b>0,003</b>
<b>Antimoine (Sb)</b>	<b>1086,6</b>	<b>4312</b>	<b>135,6</b>	<b>539</b>	<b>9611</b>	<b>3,7</b>
Césium (Cs)	431,2	1712	53,8	214	1333	0,53
Baryum (Ba)	735,8	2920	91,5	364	570	0,23
Or (Au)	221,7	880	27,7	110	2705	1,07
<b>Mercuré (Hg)</b>	<b>40,6</b>	<b>122</b>	<b>5</b>	<b>16</b>	<b>127</b>	<b>0,05</b>
Thallium (Tl)	6927,7	27490	861,9	3420		
<b>Plomb (Pb)</b>	<b>20343,3</b>	<b>80728</b>	<b>2527,5</b>	<b>10030</b>	<b>18803</b>	<b>7,44</b>
Thorium (Th)	3806,2	15104	474,5	1883	12560	4,97
<b>Uranium (U)</b>	<b>652,1</b>	<b>2588</b>	<b>81,1</b>	<b>322</b>	<b>10361</b>	<b>4,1</b>

Afin d'augmenter la sensibilité de la cellule MEDINA en diminuant le bruit de fond gamma, et également d'augmenter le temps de vie du détecteur en réduisant le flux de neutrons rapides atteignant le cristal de germanium, il est nécessaire d'intégrer de nouveaux matériaux autour du détecteur. La réduction des dommages du cristal, causés par les neutrons rapides au cours de l'irradiation, permettra également d'utiliser une intensité d'émission neutronique plus élevée améliorant encore les sensibilités.

Dans ce nouveau chapitre nous présenterons les différentes étapes ayant amené progressivement à proposer une nouvelle configuration de la cellule MEDINA permettant de réduire les bruits de fond neutronique et gamma sans altérer significativement ses performances actuelles. L'ensemble des configurations testées ont été simulées à l'aide du code MCNP [MCNP5] avec la base de données ENDF/B-VII. Le modèle initial de MEDINA, présenté et validé précédemment, est utilisé pour cette étude d'optimisation des écrans. Une validation expérimentale de l'étude a ensuite été réalisée à partir de l'implémentation de configurations simples, car la configuration offrant les meilleures performances nécessiterait des modifications lourdes de la cellule actuellement en cours d'utilisation.

## II. Amélioration du blindage du détecteur

Afin de trouver la configuration offrant les meilleures performances de blindage du détecteur GeHP aux neutrons et photons gamma, de nombreuses configurations ont été étudiées par simulation numérique MCNP [MCNP5]. Nous développerons uniquement dans ce chapitre la configuration la plus prometteuse ainsi que les quelques étapes intermédiaires. Pour la quantification de l'efficacité des écrans lors d'une irradiation neutronique pulsée, il a été choisi de s'intéresser aux courants de neutrons et de photons entrant par les différentes surfaces du cristal de germanium. Ces derniers sont déterminés à l'aide de l'estimateur MCNP F1 segmenté par une carte cosinus de manière à ne considérer que les particules (neutrons et photons) entrantes.

Le but de cette étude d'optimisation consiste en la détermination des variations relatives des quantités de particules atteignant le cristal germanium en fonction des configurations considérées, et non pas l'estimation exacte du nombre de particules. Il est alors possible de simplifier la géométrie coaxiale du cristal en une forme parallélépipédique de manière à pouvoir décomposer les effets de blindage sur les différents côtés du détecteur, la cellule MEDINA étant asymétrique (cf. Figure 63). Le modèle 3D de cette géométrie simplifiée est comparé à celui de la géométrie détaillée du cristal de germanium sur la Figure 62, et représenté au sein de la configuration initiale de la cellule MEDINA en Figure 63.

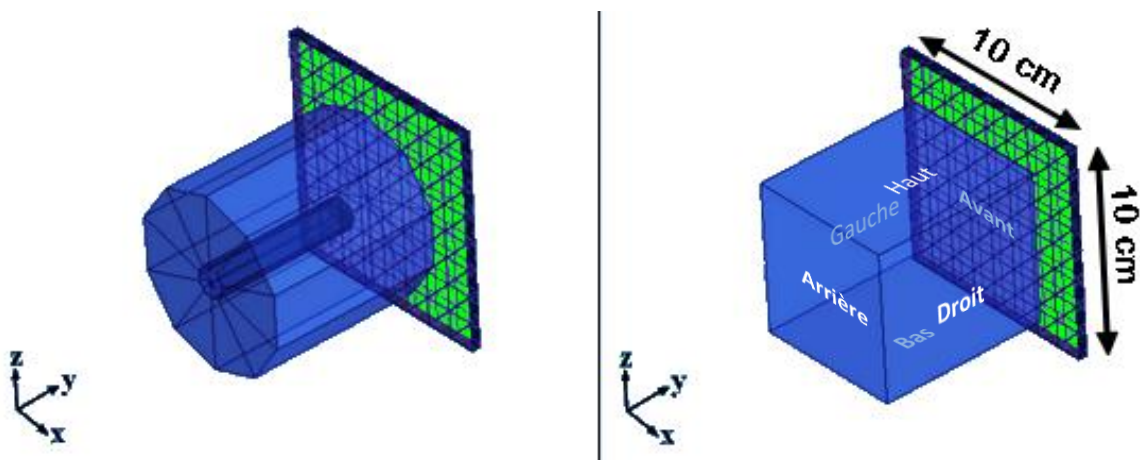


Figure 62. Géométrie détaillée (à gauche) et simplifiée (à droite) du cristal de germanium. La plaque de lithium de 10 cm x 10 cm sur la face avant du détecteur, faisant face au colis de déchets mesuré, est représentée pour illustrer l'orientation et la taille du cristal.

Sur la Figure 63, on notera la représentation des limites d'un fût de 225 L positionné dans la chambre d'irradiation. Cette représentation permettra par la suite de mieux rendre compte de certaines modifications géométriques envisagées, tel que le blindage gamma du détecteur qui ne doit pas occulter une partie de l'angle solide sous lequel le cristal de germanium voit le fût. Toutefois, afin d'observer uniquement le bruit de fond gamma induit par les éléments de structure de la cellule MEDINA, l'ensemble des simulations de ce chapitre ont été réalisées en l'absence de colis de déchets dans la cellule d'irradiation.

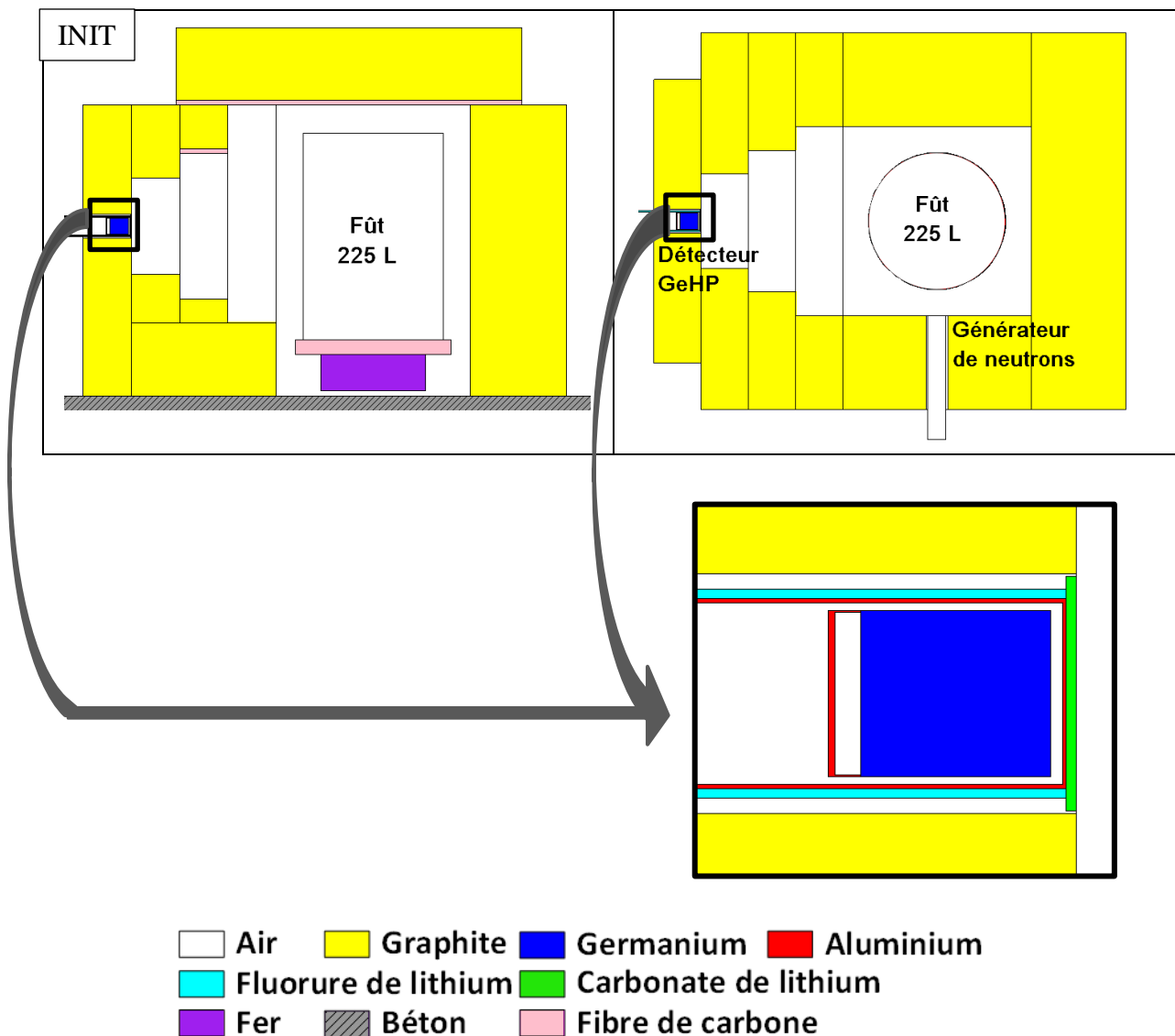


Figure 63. Modèle MCNP de la configuration initiale (INIT) de la cellule MEDINA avec la géométrie simplifiée du cristal de germanium agrandie en bas.

Les différentes étapes (A, B, C, D, E) ayant amené à la configuration montrant les meilleures performances en termes de blindage des neutrons et du rayonnement gamma de bruit de fond (configuration F) sont illustrées en Figure 64 et Figure 65. Pour l'ensemble des configurations il a été choisi de conserver la symétrie de la cellule autour du détecteur.

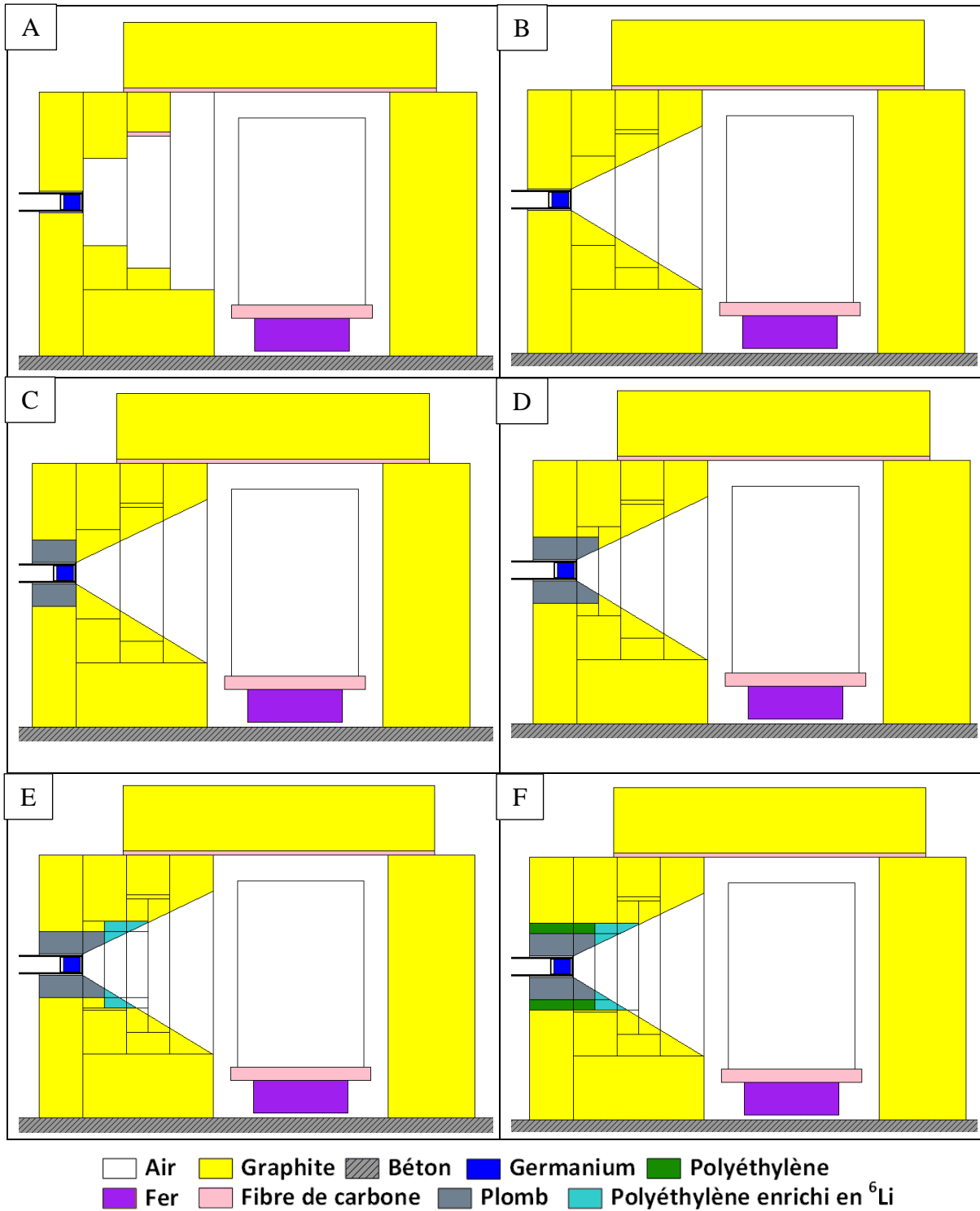


Figure 64. Vue en coupe verticale des 6 configurations intermédiaires (de A à F) d'amélioration du blindage du détecteur germanium, voir détails dans le texte ci-après.

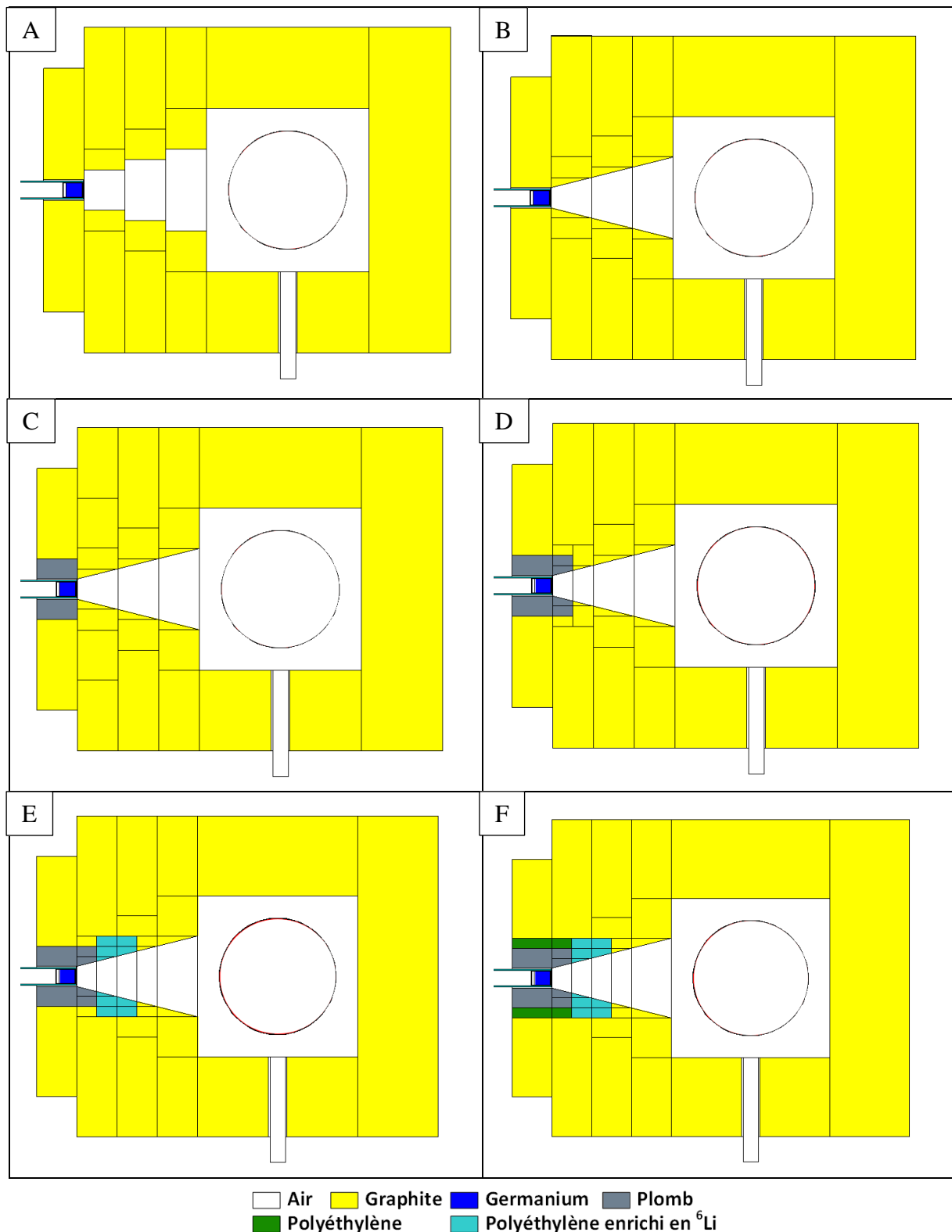


Figure 65. Vue en coupe horizontale des 6 configurations intermédiaires (de A à F) d'amélioration du blindage du détecteur germanium, voir détails dans le texte ci-après.

La première étape (A) consiste uniquement à ajouter quelques blocs de graphite par rapport à la configuration actuelle (Figure 63) de manière à réduire l'angle d'ouverture du détecteur uniquement sur le colis de déchets. L'angle d'ouverture horizontal étant déjà proche de la hauteur du colis, l'ajout de graphite a été considéré dans un premier temps uniquement sur les côtés droit et gauche du détecteur. Cette configuration devrait permettre à la fois de limiter la détection des rayonnements

gamma issus des réactions neutroniques avec les matériaux constituant la cellule, mais aussi et surtout d'augmenter la thermalisation des neutrons de haute énergie émis depuis le générateur avant qu'ils n'atteignent le cristal de germanium. Par la suite (configuration B), du graphite a également été ajouté sur les côtés bas et haut de manière à ce que l'angle d'ouverture corresponde exactement à la hauteur du colis. Lors de cette étape (B), il a également été choisi de remplacer le contour en escalier par une forme conique. Ensuite (étape C), afin de limiter le bruit de fond gamma et notamment le rayonnement prompt de capture de l'isotope  $^{12}\text{C}$  (raies gamma d'énergies 3863 keV et 4945 keV), 10 cm de plomb ont été ajoutés autour du détecteur. D'après la loi de Beer-Lambert énoncée au chapitre II appliquée avec les coefficients d'atténuation massique du plomb [NIST04], cette épaisseur permet d'atténuer plus de 99 % des rayonnements gamma de 5000 keV. Dans une nouvelle étape (D), afin de réduire encore le taux de comptage des raies gamma du bruit de fond, 10 cm de plomb ont été également insérés dans le graphite en avant du détecteur. Ensuite dans l'étape E, de manière à améliorer le blindage des neutrons, 20 cm de polyéthylène ( $\text{C}_2\text{H}_4$ ) ont été ajoutés devant le plomb. Toutefois, l'émission d'une raie gamma à 2223 keV par capture neutronique sur l'hydrogène risque d'augmenter de manière significative le bruit de fond, et ce d'autant plus que le polyéthylène est proche du détecteur. Il a donc été choisi de doper ce polyéthylène avec du lithium. En effet, la principale réaction d'absorption des neutrons thermiques par les noyaux de  $^6\text{Li}$ , rappelée ci-dessous, ne conduit pas à l'émission de rayonnement gamma et la section efficace associée est nettement plus grande que celle de la capture radiative des isotopes  $^6\text{Li}$  et  $^1\text{H}$  (voir Figure 66).

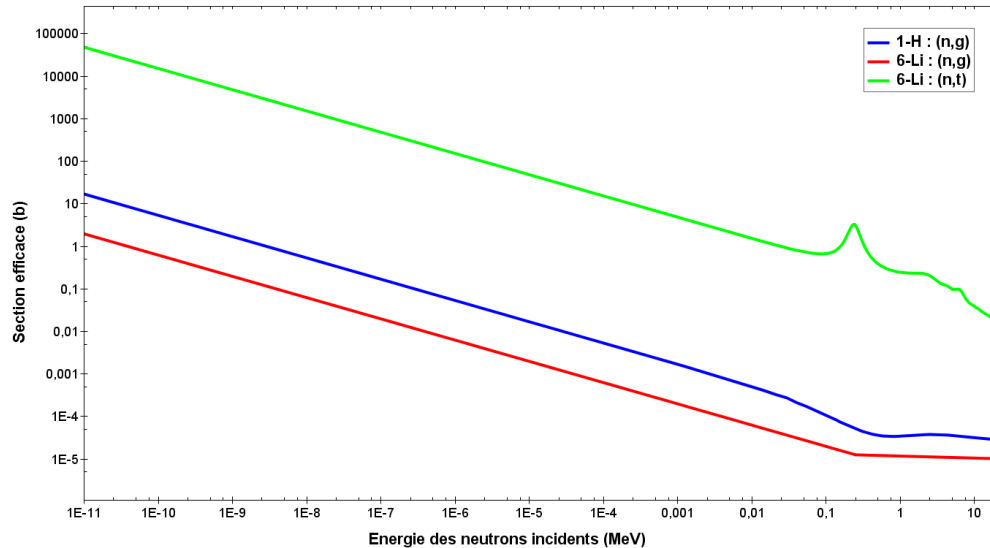
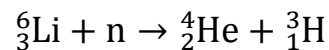


Figure 66. Section efficace de capture neutronique radiative des isotopes  $^1\text{H}$  (en bleu) et  $^6\text{Li}$  (en rouge), et de capture par réaction (n,t) sur l'isotope  $^6\text{Li}$  (en vert).

Un tel assemblage permet donc une bonne thermalisation des neutrons par les noyaux d'hydrogène, et de capturer les neutrons thermiques sans émission gamma parasite. L'enrichissement industriel peut se faire à hauteur de 7.5 % en lithium naturel (7.5 %  $^6\text{Li}$  + 92.5 %  $^7\text{Li}$ ), ou en lithium enrichi en  $^6\text{Li}$  si le demandeur est dans la capacité de s'en procurer [JC215, SWX215]. Dans notre cas nous avons supposé être dans la capacité de fournir du lithium hautement enrichi en  $^6\text{Li}$  afin d'obtenir un polyéthylène enrichi à 7 % en  $^6\text{Li}$ . On notera la possibilité d'utiliser un dopage au bore dont la section efficace de la réaction principale  $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$  est encore plus élevée que celle de la

réaction avec des isotopes  $^6\text{Li}$  précédemment mentionnée. Cette réaction avec l'isotope  $^{10}\text{B}$  produit dans 93 % des cas un isotope  $^7\text{Li}$  dans un état excité, responsable de l'émission d'un rayonnement gamma prompt (478 keV), nécessitant l'utilisation d'écrans gamma supplémentaires. De plus, le bore fait également partie des toxiques recherchés dans les colis de déchets radioactifs [ANDRA09]. Finalement, dans l'étape F, pour augmenter les performances de blindage neutronique, 5 cm de polyéthylène supplémentaires ont été ajoutés autour du plomb. Comme ce dernier ajout se trouve autour des 10 cm de plomb, il n'est pas indispensable d'utiliser du polyéthylène enrichi en lithium, les rayonnements de capture de l'hydrogène, d'énergie 2223 keV, étant très fortement atténués avant d'atteindre le détecteur (99,5 %).

L'utilisation d'un générateur de neutrons GENIE 16 permet plusieurs modes d'irradiation (continue, ou pulsée avec une période de répétition et une durée des impulsions ajustables). Nous avons choisi pour cette étude de considérer le cas le plus couramment utilisé pour les mesures dans la cellule MEDINA, à savoir le chronogramme décrit dans le chapitre II. Pour rappel, il s'agit d'une irradiation pulsée de période 1 ms et de durée d'impulsion  $50\ \mu\text{s}$ . Un temps d'attente ( $20\ \mu\text{s}$ ) est également paramétré à la fin de chaque impulsion avant d'ouvrir une fenêtre de mesure afin de permettre une bonne thermalisation des neutrons. L'estimateur MCNP du courant (*tally* F1) est alors segmenté en une première plage temporelle de 0 à  $70\ \mu\text{s}$  correspondant à la présence de neutrons rapides et épithermiques dans la chambre d'irradiation, et une seconde plage temporelle de  $70\ \mu\text{s}$  à 10 ms après l'impulsion correspondant aux fenêtres de mesure entre les impulsions (voir illustration Figure 67). De par la rapide thermalisation des neutrons émis dans la cellule MEDINA, cette dernière plage temporelle ne comprend plus que des neutrons proches de l'énergie thermique.

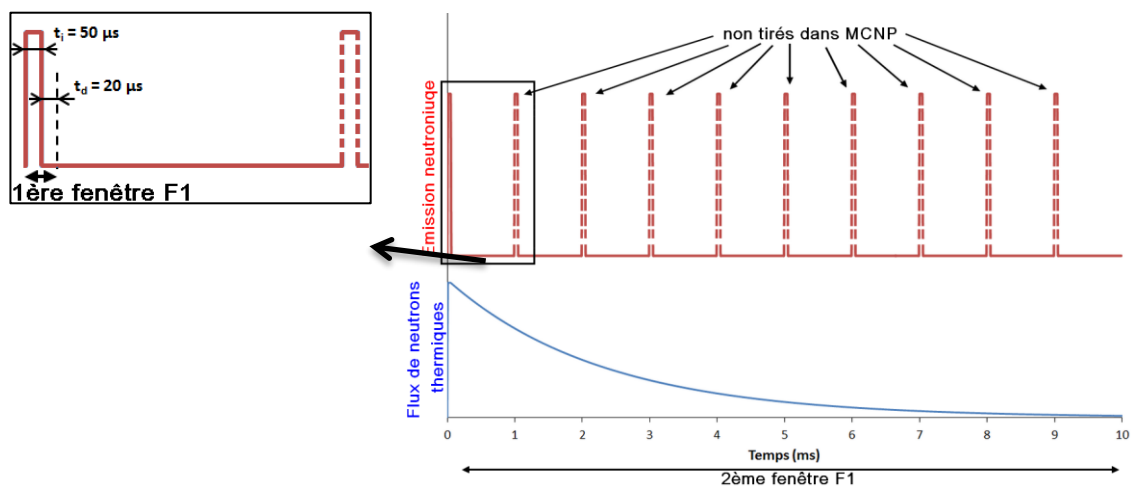


Figure 67. Chronogramme d'irradiation pulsée le plus couramment utilisé dans MEDINA, allure du flux thermique du à la première impulsion pour une constante de décroissance de 2,3 ms et fenêtres temporelles d'estimation des courants de particules correspondantes, dans MCNP.

Afin d'obtenir le nombre de particules (neutrons ou photons) traversant chaque surface par unité de temps, le résultat de l'estimateur MCNP de courant F1 est multiplié par la valeur de l'émission du générateur de neutrons déterminée dans la référence [Havenith15],  $(7,18 \pm 0,93) \times 10^7\ \text{s}^{-1}$ . Les valeurs correspondantes à la configuration initiale sont répertoriées dans le Tableau 15 pour les neutrons et le Tableau 16 pour les photons. Les incertitudes absolues mentionnées prennent en compte les fluctuations statistiques de la simulation et l'incertitude sur l'émission neutronique.

**Tableau 15. Courants de neutrons ( $s^{-1}$ ) entrant par chaque face de la géométrie simplifiée du cristal de germanium et valeur totale pour la configuration actuelle de la cellule MEDINA.**

Config. initiale	Droit	Gauche	Haut	Bas	Avant	Arrière	Total
<b>neutron &gt; 1 MeV pendant les impulsions</b>	6000 ± 780	4700 ± 610	4320 ± 560	4310 ± 560	14100 ± 1830	1040 ± 135	34500 ± 4480
<b>neutron &lt; 1 keV pendant les impulsions</b>	4400 ± 570	4500 ± 590	4400 ± 570	4500 ± 580	8000 ± 1000	1200 ± 20	27000 ± 3500
<b>neutron &lt; 1 keV entre les impulsions</b>	190 ± 20	190 ± 20	180 ± 20	180 ± 20	1450 ± 190	20 ± 3	2200 ± 290

**Tableau 16. Courants de photons ( $s^{-1}$ ) entrant par chaque face de la géométrie simplifiée du cristal de germanium et valeur totale pour la configuration actuelle de la cellule MEDINA.**

Config. initiale	Droit	Gauche	Haut	Bas	Avant	Arrière	Total
<b>4,4 MeV pendant les impulsions</b>	1240 ± 160	780 ± 100	650 ± 80	630 ± 80	3100 ± 400	110 ± 15	6500 ± 850
<b>intégrale &gt; 50 keV pendant les impulsions</b>	6700 ± 870	5800 ± 760	5600 ± 730	5600 ± 730	12400 ± 1600	1700 ± 220	37800 ± 4900
<b>2,2 MeV entre les impulsions</b>	30 ± 5	30 ± 4	100 ± 15	40 ± 6	300 ± 40	(*)	520 ± 70
<b>4,9 MeV entre les impulsions</b>	100 ± 15	100 ± 15	90 ± 15	100 ± 15	160 ± 20	10 ± 2	580 ± 80
<b>intégrale &gt; 50 keV entre les impulsions</b>	1800 ± 240	1800 ± 240	1900 ± 250	2000 ± 270	4000 ± 520	460 ± 60	12100 ± 1600

(\*) Résultats non pertinents car très faible précision statistique de simulation ( $\gg 5\%$ )

Les neutrons d'énergie supérieure à 1 MeV étant à l'origine de la dégradation de la résolution des cristaux de germanium, les courants de neutrons pendant les impulsions du générateur ont été considérés dans un premier temps pour des énergies supérieures à 1 MeV. Dans un second temps, afin de quantifier également la présence de neutrons thermiques pendant les impulsions, les courants ont également été considérés pour des énergies inférieures à 1 keV, comme pour les courants entre les impulsions. Concernant le bruit de fond gamma, les rayonnements principaux pendant et entre les impulsions ont été considérés, i.e. la raie d'énergie 4,4 MeV de collision inélastique avec des neutrons rapides sur les noyaux de l'isotope  $^{12}\text{C}$  pendant les impulsions, et les raies à 2,2 MeV et 4,9 MeV de capture radiative des neutrons thermiques par les isotopes  $^1\text{H}$  et  $^{12}\text{C}$ . En plus de ces indicateurs, le courant photonique total a aussi été considéré au-delà d'une énergie seuil fixée à 50 keV. Les spectres de courants totaux neutrons et gamma sont représentés respectivement en Figure 68 et Figure 69.



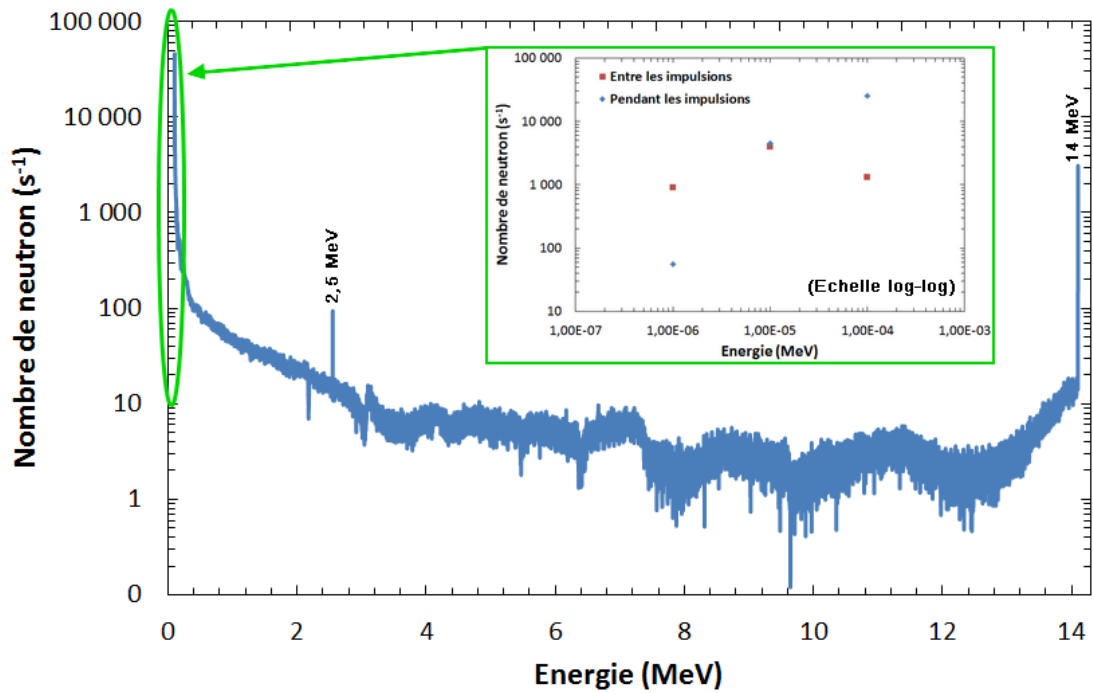


Figure 68. Courants de neutrons totaux pendant les impulsions en bleu. Les énergies inférieures à 1 keV, seules énergies encore présentes entre les impulsions (en rouge), sont représentées sur un agrandissement en échelle log-log.

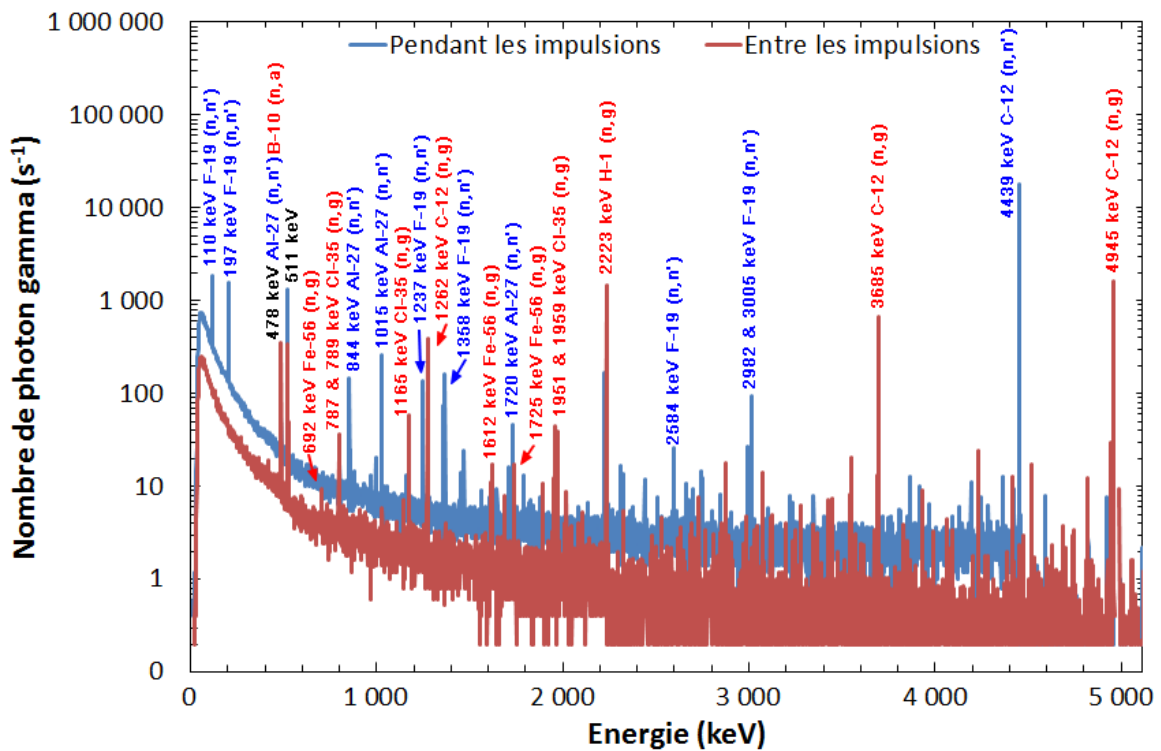


Figure 69. Courants de photons gamma totaux pendant les impulsions en bleu et entre les impulsions en rouge.

A partir de ces valeurs de référence, on peut constater une bonne symétrie des courants de neutrons de faibles énergies pendant et entre les impulsions (côtés droit, gauche, haut et bas du cristal de germanium), révélant l'homogénéité du flux de neutrons thermiques autour du détecteur germanium. Cette homogénéité est confirmée par la symétrie des courants de photons d'énergie 4,9 MeV provenant principalement des captures radiatives de l'isotope  $^{12}\text{C}$  du graphique entourant le détecteur. La présence de plaques de fibres de carbone (contenant 6 % en masse d'isotope  $^1\text{H}$ ), pour soutenir les blocs graphite du haut de la chambre d'irradiation, induit par contre un courant de photons d'énergie 2,2 MeV plus important sur le haut du détecteur. On notera que la plaque tournante des fûts, positionnée dans le bas de la chambre d'irradiation, est également faite de fibres de carbone. Toutefois, celle-ci représente un volume plus de 3,5 fois inférieur à celui des plaques supérieures. Le bas du détecteur ne montre donc pas un courant à 2,2 MeV aussi élevé que le haut du détecteur. Concernant les courants de neutrons de haute énergie et de photons pendant les impulsions, la position du générateur de neutrons par rapport au détecteur (Figure 63) induit un courant plus élevé sur le côté droit du cristal de germanium. D'autre part, on remarque que la face avant montre des valeurs de courant 2 à 3 fois supérieures aux faces latérales qui sont entourées de blocs graphite qui agit comme un premier écran aux neutrons et rayonnements gamma produits dans la cellule. Enfin, la face arrière présente des valeurs de courant très faibles par rapport aux faces latérales (d'un facteur 4 à 10), en dehors des neutrons d'énergie inférieure à 1 keV entre les impulsions pour lesquelles le facteur n'est que de 1,5, principalement à cause de la réflexion des neutrons de faible énergie sur le graphite entourant le détecteur.

Afin de quantifier les efficacités du blindage des différentes configurations simulées (A, B, C, D, E et F), les rapports entre les courants de la configuration initiale et ceux de chaque configuration d'écrans sont calculés et représentés en Figure 70, Figure 71, Figure 72 et Figure 73 (les valeurs sont reportées dans l'annexe 3 de ce mémoire de thèse). Seule la face arrière, représentant une faible composante des bruits et possédant une très faible précision statistique de calcul n'a pas été représentée dans ces figures. En outre, un rapport « Total » sur la somme des courants sur toutes les faces du cristal de germanium, est présenté.

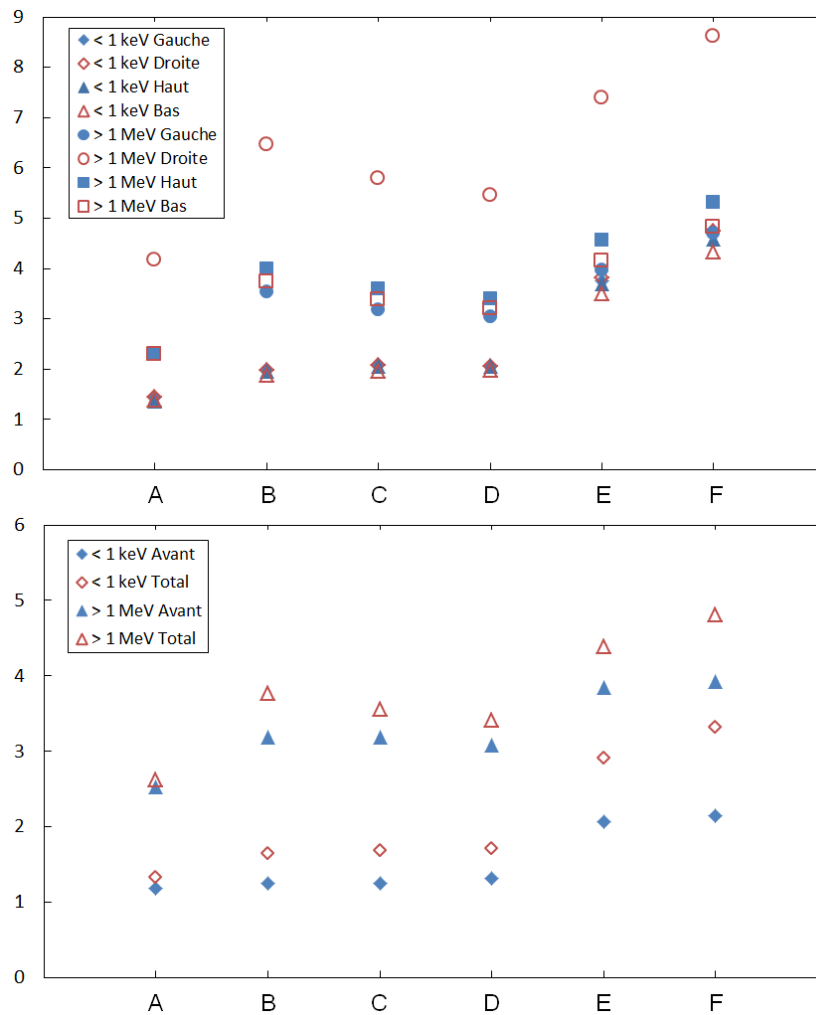


Figure 70. Rapports des courants de neutrons entre la configuration initiale et les différentes configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite/Gauche/Haut/Bas) en haut, (Avant/Total) en bas, où « Total » est le rapport des courants totaux, pendant les impulsions neutroniques.

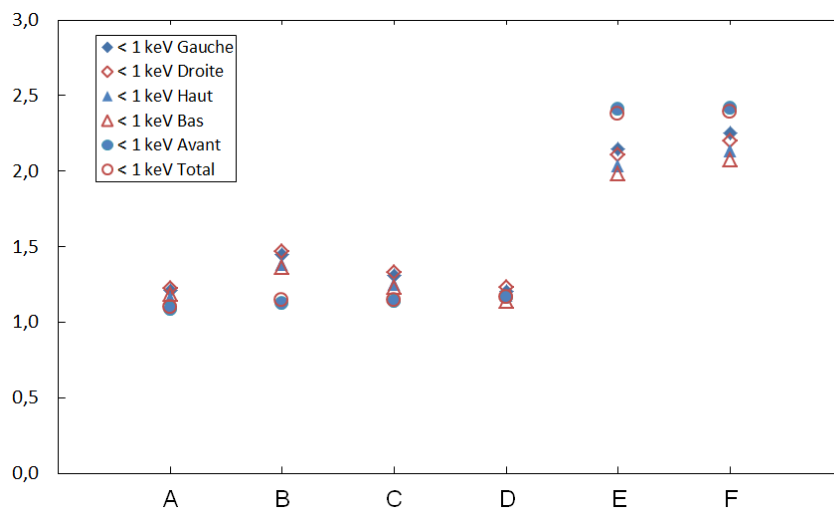


Figure 71. Rapports des courants de neutrons entre la configuration initiale et les différentes configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite/Gauche/Haut/Bas/Avant/Total), où « Total » est le rapport des courants totaux, entre les impulsions neutroniques.

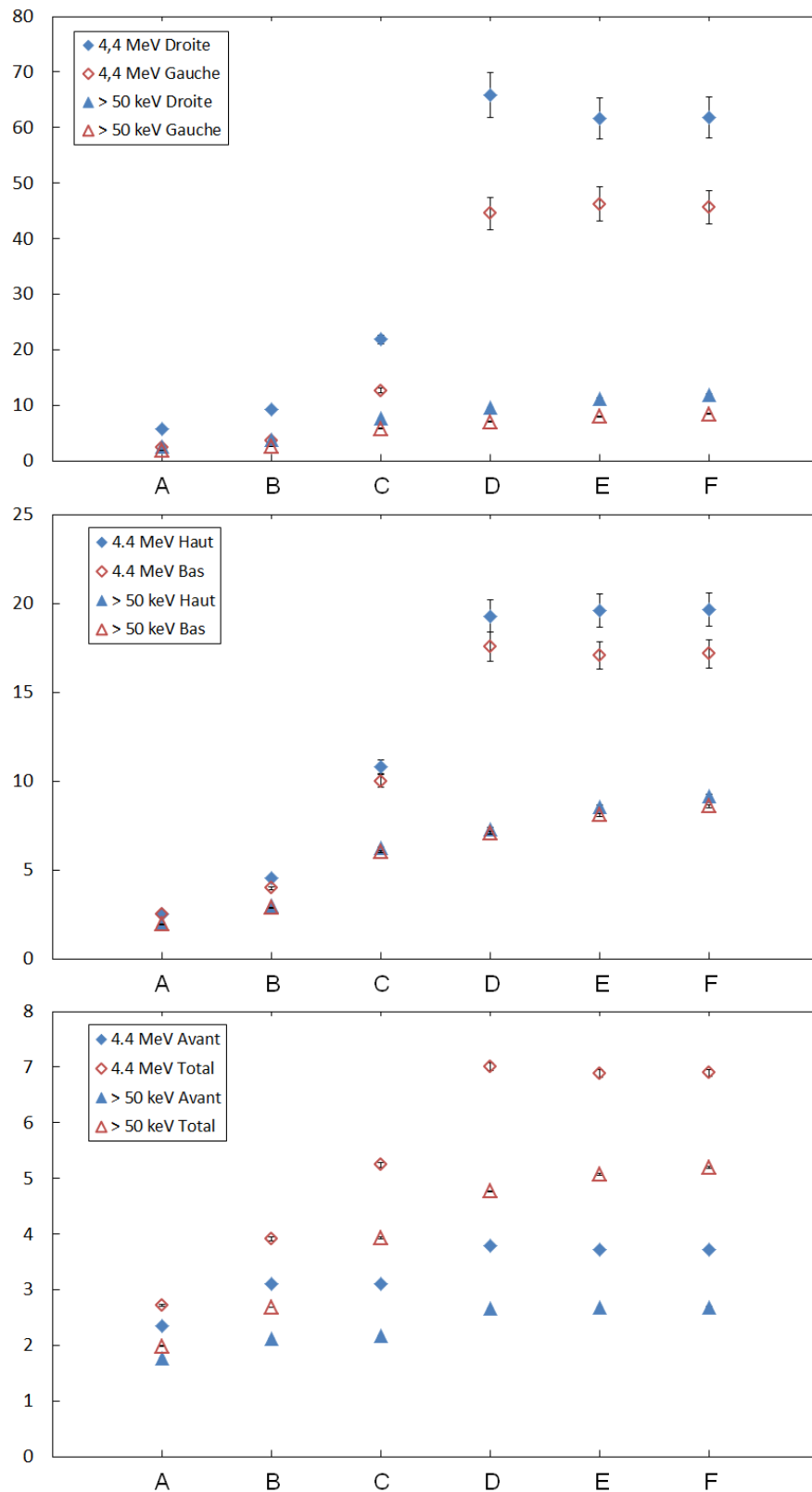


Figure 72. Rapports des courants de photons entre la configuration initiale et les différentes configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite/Gauche) sur la figure du haut, (Haut/Bas) sur celle du milieu, (Avant/Total) en bas, où « Total » est le rapport des courants totaux, pendant les impulsions neutroniques.

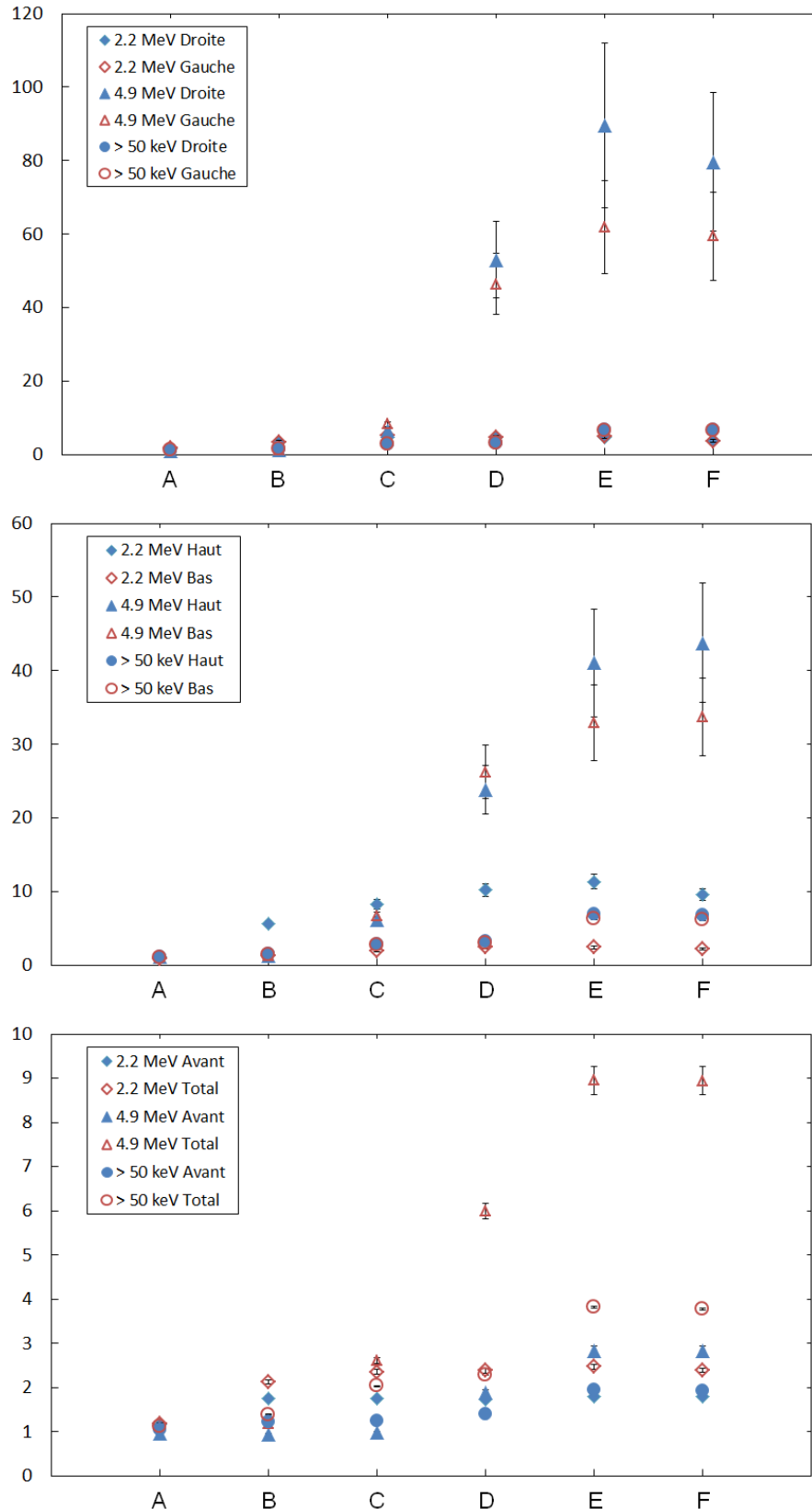


Figure 73. Rapports des courants de photons entre la configuration initiale et les configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite/Gauche) sur la figure du haut, (Haut/Bas) sur celle du milieu, (Avant/Total) en bas, où « Total » est le rapport des courants totaux, entre les impulsions neutroniques.

A propos des rapports de courants des raies gamma à 4,4 MeV, 2,2 MeV et 4,9 MeV en Figure 73, on remarque de fortes incertitudes provenant de la statistique de simulation des configurations d'écrans. En effet, le nombre déjà faible de particules traversant chaque surface de la géométrie simplifiée du cristal de germanium est fortement réduit par l'ajout de matériaux absorbants. Cela implique alors des temps de convergence bien plus importants pour les simulations. Les valeurs de rapport pour ces raies gamma peuvent alors être entachées d'un biais de simulation. Cependant, on note que la difficulté de convergence des simulations traduit la forte réduction des bruits de fond correspondants.

On observe que les ajouts simples de graphite (configurations A et B) permettent de réduire les bruits de fond neutron et gamma pendant les impulsions neutroniques (Figure 70 et Figure 72), mais n'influencent que légèrement les bruits de fond entre celles-ci (Figure 71 et Figure 73). L'ajout progressif de plomb (configurations C et D) entraîne une très forte diminution des bruits de fond gamma pendant et entre les impulsions du générateur (Figure 72 et Figure 73), mais amène également une légère augmentation des courants de neutrons par réaction  $(n,2n)$ , voir Figure 70 et Figure 71. Le remplacement d'une partie du graphite par du polyéthylène enrichi au lithium (configuration E) permet non seulement de réduire les courants de neutrons pendant et après les impulsions (Figure 70 et Figure 71) mais également les courants de photons après les impulsions (Figure 73). En effet cela permet notamment de réduire la quantité de graphite en face avant du détecteur, et donc le nombre de captures radiatives de l'isotope  $^{12}\text{C}$ . Enfin l'intégration de polyéthylène autour du plomb (configuration F) permet de réduire les courants de neutrons rapides et de basse énergie pendant les impulsions (Figure 70) sans dégrader de manière significative les performances de blindage gamma atteintes précédemment (Figure 72 et Figure 73).

Finalement, pendant les impulsions du générateur de neutrons, la configuration de blindage complet (F) permet de réduire le bruit de fond gamma et des neutrons de haute énergie d'un facteur 5 (valeur globale sur l'ensemble des faces du cristal de germanium, Figure 70 et Figure 72). Entre les impulsions, le bruit de fond gamma est globalement réduit d'un facteur 4 (Figure 73), et celui des neutrons de basse énergie d'un facteur 2 (Figure 71). On pourra remarquer que les courants de photons gamma et des neutrons de haute énergie sur la face avant du cristal ne peuvent être réduits de manière significative sans modifier l'efficacité de détection des rayonnements gamma émis depuis le colis de déchets radioactifs.

L'influence de la nouvelle configuration F sur le flux de neutrons thermiques induit dans la cellule MEDINA a également été calculée à l'aide de l'estimateur MCNP de flux ponctuel F5, décomposé en temps. En effet le temps de vie des neutrons thermiques dans MEDINA, étudié dans la référence [Mildenberger15], est un paramètre important pour les performances de l'activation neutronique. L'estimation du flux de neutrons d'énergie inférieure à 1 keV en fonction du temps a été réalisée au centre de la chambre d'irradiation en l'absence du colis de déchets radioactif, et est représentée sur la Figure 74. Comme on peut le constater, le temps de vie des neutrons au centre de la cellule est réduit de seulement 11 % et la modification de MEDINA est sans influence sur l'intégrale du flux de neutrons qui est identique (supérieure de 0,1 %) à celle de la configuration initiale aux incertitudes statistiques de calcul près (< 0,1 %).

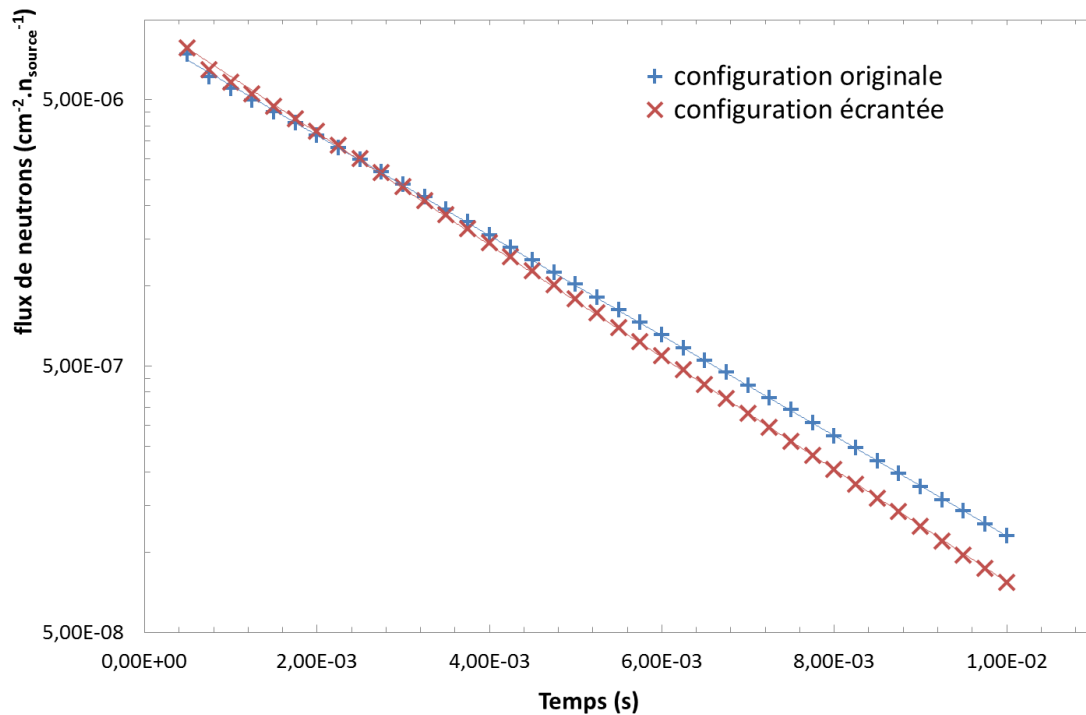


Figure 74. Temps de vie des neutrons basses énergies ( $E < 1$  keV) au centre de la cellule MEDINA vide, calculé à partir de l'estimateur de flux MCNP F5 pour la configuration initiale et pour celle offrant les meilleures performances en termes de blindage.

L'effet sur le flux de neutrons interrogateur a également été étudié dans un cas plus réaliste de mesure sur un colis de déchets. Dans ce cas, un fût métallique de 200 L contenant une matrice béton (voir Tableau 5 au chapitre III) avec 60 g de chlore répartie de manière homogène (200 ppm [Mauerhofer14]) a été simulée dans la cellule MEDINA originale et avec la nouvelle géométrie (F). Le taux de capture de l'isotope  $^{35}\text{Cl}$ , réparti de manière homogène dans ce type de matrice, a alors été calculé à l'aide de l'estimateur MCNP de flux F4 convolué avec les sections efficaces de capture radiative de cet isotope. Ce dernier est souvent utilisé pour la calibration des systèmes de mesure par activation neutronique pulsée ainsi que pour la validation des simulations numériques [Mauerhofer13, Mauerhofer14, Naqvi15b]. Afin de prendre en compte les effets de matrice, le fût de 200 L a été segmenté de la même manière qu'illustré en Figure 11 dans le chapitre III. Les taux de capture volumique sont alors représentés, pour chaque sous cellule, en Figure 75. On constate que la configuration d'écran (F) n'induit pas de variation significative par rapport à la configuration initiale de la cellule MEDINA.

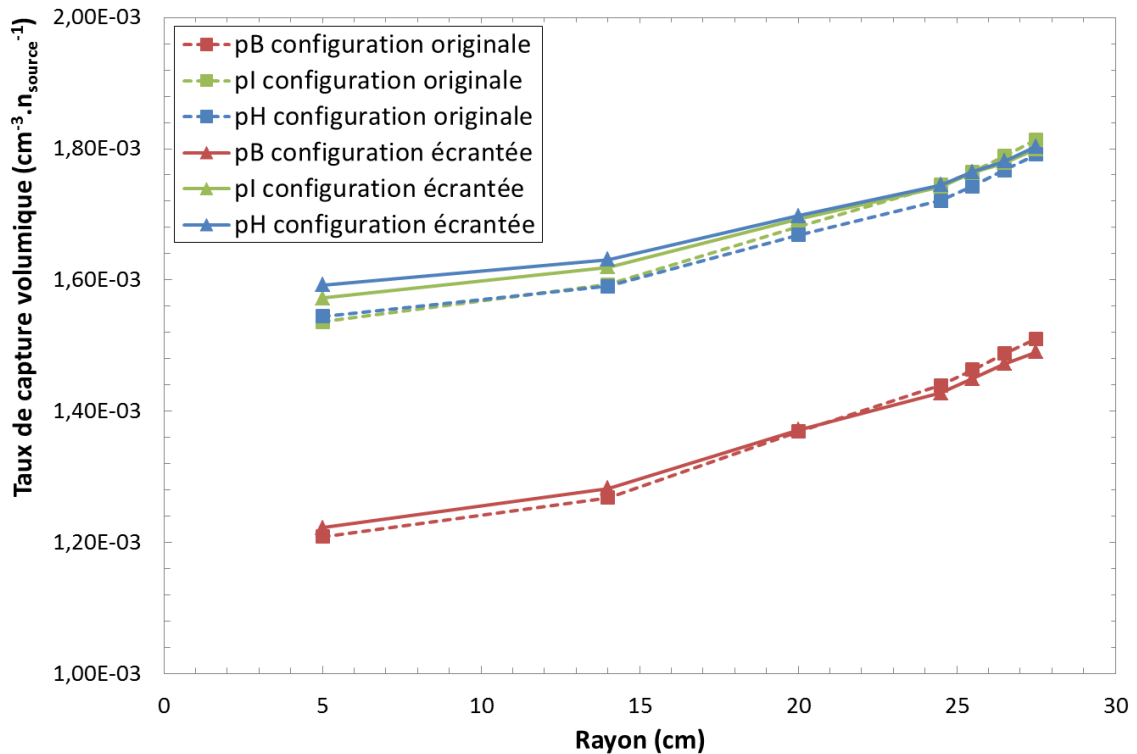


Figure 75. Taux de capture radiative volumique ( $\text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ) de l'isotope  $^{35}\text{Cl}$  contenu dans un colis de déchet bétonné, calculé dans chacun des sous volumes d'un fût de 225 L (voir Figure 11 au chapitre III) simulé dans la cellule MEDINA pour la géométrie initiale et celle offrant les meilleures performances de blindage.

De plus, la configuration d'écran envisagée n'introduisant pas d'élément supplémentaire dans le champ de vue du détecteur, l'efficacité de détection des rayonnements gamma émis depuis le colis de déchets n'est pas modifiée (moins de 1 % de variation pour une incertitude statistique de simulation de 0,1 %).

Les modifications permettant les meilleures performances de blindage du détecteur dans la cellule MEDINA n'affecteront donc pas de manière significative les performances actuelles de la cellule.

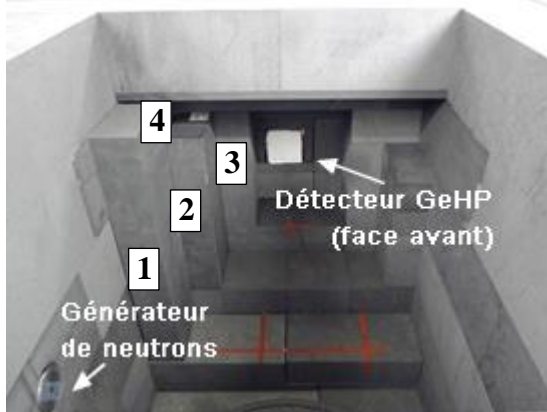
## III. Validation expérimentale de l'effet des écrans

### III.1. Mesures dans la cellule MEDINA

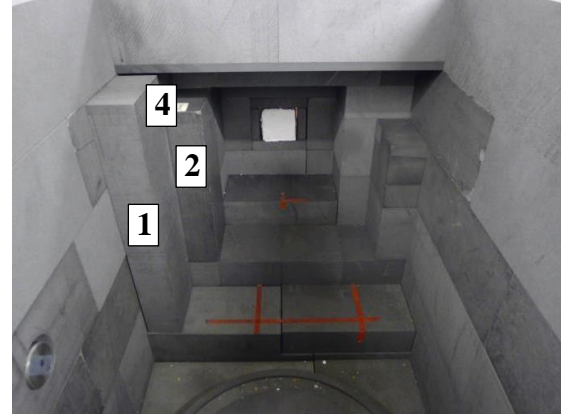
La configuration finale (F) exposée précédemment impliquerait d'importantes modifications de la cellule MEDINA. Des expériences étant actuellement en cours sur cette installation, il n'est pas possible pour l'instant d'implémenter de tels changements. Il a donc été décidé d'effectuer une validation expérimentale de l'apport des écrans à partir de modifications simples consistant en l'ajout de quelques blocs de graphite et briques de plomb entre le générateur de neutrons et le détecteur. Les six configurations réalisées sont représentées en Figure 76.



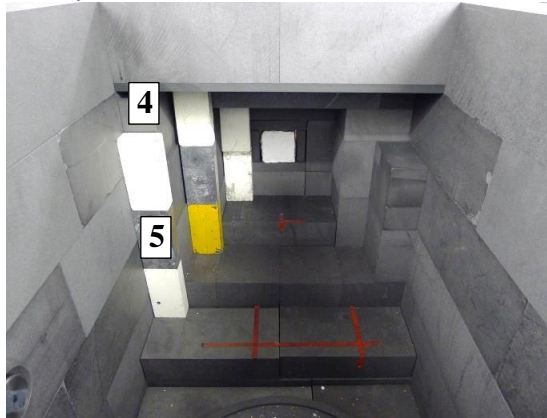
G.1 (graphite n°1)



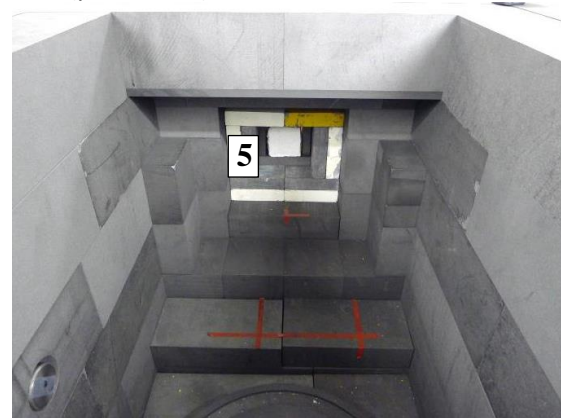
G.2 (graphite n°2)



Pb.1 (plomb n°1)



Pb.2 (plomb n°2)



GPb.1 (graphite + plomb n°1)



GPb.2 (graphite + plomb n°2)

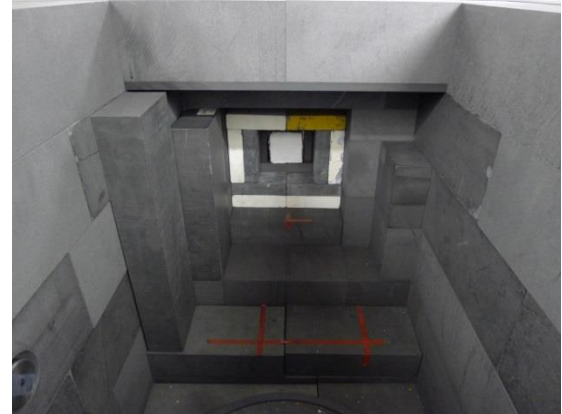


Figure 76. Photos des configurations simples d'écrans implémentées dans MEDINA où l'on peut observer : 1) un bloc graphite de 70 cm × 20 cm × 10 cm; 2) un bloc graphite de 50 cm × 20 cm × 10 cm; 3) un bloc graphite de 40 cm × 20 cm × 10 cm; 4) un bloc graphite de 20 cm × 20 cm × 10 cm; 5) huit ou dix briques de plomb de 10 cm × 10 cm × 5 cm.

Le bruit de fond gamma actif est alors mesuré, pour chacune des configurations, entre les impulsions de neutrons de 14 MeV, pendant une durée totale d'irradiation de 7200 s, selon le chronogramme utilisé pour les simulations numériques (durée d'impulsion de 50  $\mu$ s, délai entre la fin de l'impulsion et la mesure de 20  $\mu$ s, acquisition des spectres gamma d'activation jusque la fin de la

période de répétition de 1 ms). La tension du générateur est fixée à 85 kV, et le courant à 40  $\mu\text{A}$ , résultant en une émission neutronique de l'ordre de  $(7,18 \pm 0,93) \times 10^7 \text{ s}^{-1}$  [Havenith15]. L'acquisition des spectres est faite en mode ZDT (*Zero Dead Time*, voir au paragraphe II.3 du chapitre I) du logiciel GammaVision-32 (ORTEC). Le spectre correspondant à la configuration initiale est représenté en Figure 77.

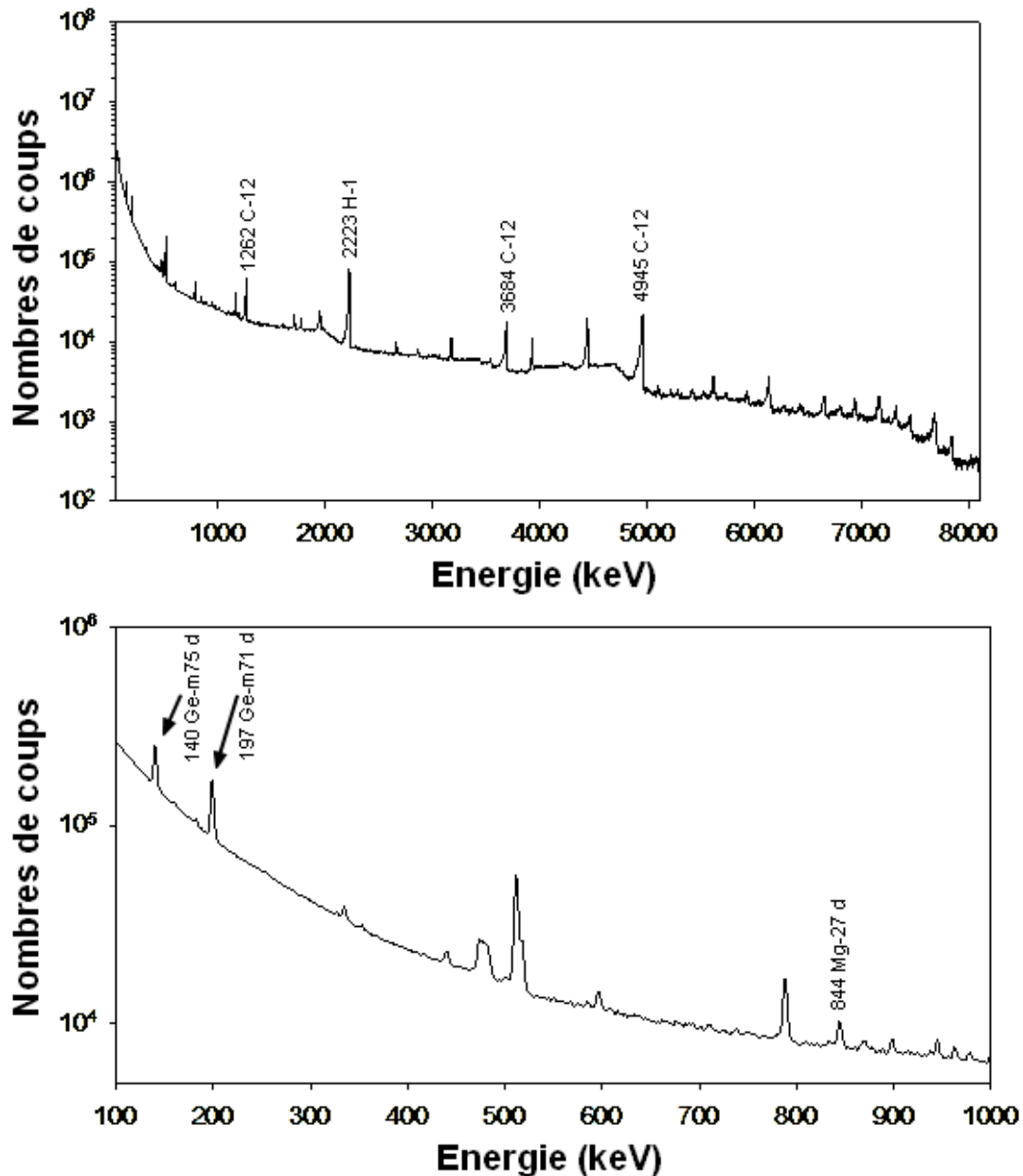


Figure 77. Bruit de fond gamma mesuré entre les impulsions neutroniques pour la configuration initiale de la cellule MEDINA. Le spectre entier (en haut) montre les raies promptes de capture radiative induites par les neutrons thermiques et l'agrandissement de 100 keV à 1000 keV (en bas) montre des raies gamma d'activation induites par les neutrons rapides.

On peut remarquer la présence d'une traîne significative sur la gauche des raies gamma représentées sur la Figure 77. Ceci est dû à la dégradation du cristal de germanium par les neutrons de haute énergie provenant du générateur. Un recuit du cristal de germanium a été planifié à la suite de ces mesures.

Afin de quantifier l'impact des écrans sur le bruit de fond gamma, les taux de comptage des raies promptes de capture radiative des isotopes  $^1\text{H}$  et  $^{12}\text{C}$ , ainsi que le taux de comptage total des spectres gamma (au-delà d'une énergie de 50 keV) ont été déterminés. La cellule MEDINA n'étant pas pourvue de détecteur de neutrons, l'impact des écrans sur le bruit de fond neutronique a été évalué à partir des raies gamma d'activation induites par des neutrons rapides. Il est ainsi possible de contrôler le flux de neutrons rapides autour du détecteur à partir du taux de comptage de la raie gamma d'énergie 844 keV émise par décroissance de l'isotope  $^{27}\text{Mg}$  ( $T_{1/2} = 9,46$  min) produit dans l'enceinte en aluminium du détecteur par réaction (n,p) sur l'isotope  $^{27}\text{Al}$ . Cette réaction est induite par des neutrons d'énergie supérieure à 1,9 MeV (voir section efficace en Figure 78). Il est également possible de contrôler le flux de neutrons rapides au niveau du détecteur à partir des réactions  $^{76}\text{Ge}(n,2n)$  et  $^{72}\text{Ge}(n,2n)$ , avec des énergies seuil de 9,6 et 10,9 MeV, respectivement (voir Figure 78). Ces réactions résultent en l'émission de rayonnements gamma à 140 et 197 keV à partir des décroissances respectives des isotopes  $^{75\text{m}}\text{Ge}$  ( $T_{1/2} = 47,7$  s) et  $^{71\text{m}}\text{Ge}$  ( $T_{1/2} = 20,4$  ms). Les taux de comptages des rayonnements gamma prompts et retardés des isotopes mentionnés précédemment, mesurés pour la configuration initiale ainsi que les six configurations simples de blindage, sont résumés dans le Tableau 17. Les bruits de fond neutronique et gamma sont plus ou moins réduits suivant la configuration considérée.

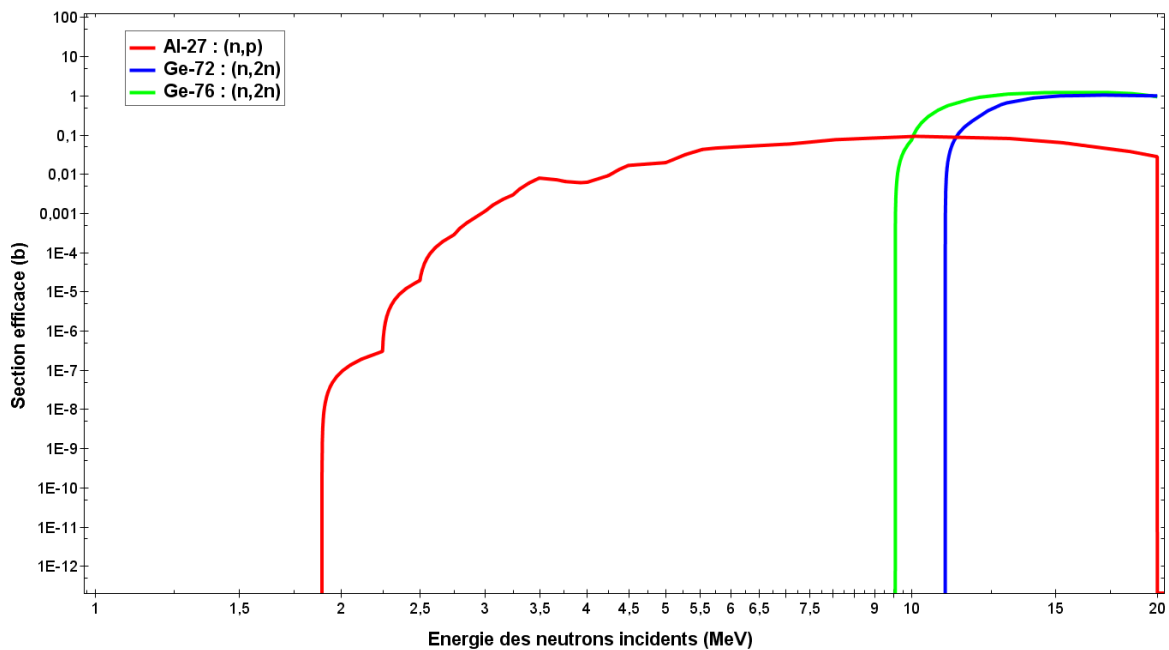


Figure 78. Sections efficaces de réactions d'activation par des neutrons de haute énergie sur les isotopes  $^{27}\text{Al}$ ,  $^{72}\text{Ge}$  et  $^{76}\text{Ge}$ .

Tableau 17. Taux de comptage des rayonnements prompts de captures radiatives et retardés d'activation neutronique des isotopes Al et Ge (moniteurs du flux de neutrons rapides) pour la configuration originale de MEDINA (référence) et pour les configurations simples d'écran testées expérimentalement (G.1, Pb.1, GPb.1, G.2, Pb.2, GPb.2).

Taux de comptage des raies gamma prompts ( $s^{-1}$ )								
Isotope	$E_\gamma$ (keV)	Réf.	G.1	Pb.1	GPb.1	G.2	Pb.2	GPb.2
$^{12}\text{C}$	1262	$43 \pm 1$	$39 \pm 1$	$35 \pm 1$	$35 \pm 1$	$40 \pm 1$	$23 \pm 1$	$22 \pm 1$
$^1\text{H}$	2223	$103 \pm 1$	$98 \pm 2$	$98 \pm 2$	$95 \pm 2$	$100 \pm 2$	$65 \pm 1$	$67 \pm 1$
$^{12}\text{C}$	3684	$27 \pm 1$	$27 \pm 1$	$22 \pm 1$	$22 \pm 1$	$25 \pm 1$	$14 \pm 1$	$14 \pm 1$
$^{12}\text{C}$	4945	$51 \pm 1$	$47 \pm 1$	$42 \pm 1$	$42 \pm 1$	$47 \pm 1$	$28 \pm 1$	$27 \pm 1$
Intégrale de spectre	> 50	27300	24800	26700	24500	25750	23450	22550
Taux de comptage des raies dues à l'activation par les neutrons rapides ( $s^{-1}$ )								
Isotope	$E_\gamma$ (keV)	Réf.	G.1	Pb.1	GPb.1	G.2	Pb.2	GPb.2
$^{75}\text{mGe}$ (retardé)	140	$157 \pm 2$	$102 \pm 3$	$153 \pm 2$	$91 \pm 2$	$112 \pm 3$	$148 \pm 4$	$108 \pm 3$
$^{71}\text{mGe}$ (retardé)	197	$148 \pm 2$	$81 \pm 2$	$147 \pm 2$	$67 \pm 1$	$93 \pm 1$	$139 \pm 3$	$86 \pm 2$
$^{27}\text{Mg}$ (retardé)	844	$5,3 \pm 0,2$	$3,3 \pm 0,2$	$4,9 \pm 0,3$	$2,6 \pm 0,2$	$3,6 \pm 0,2$	$4,7 \pm 0,3$	$2,4 \pm 0,2$

Notons qu'à cause du taux de comptage très élevé et de la saturation de l'électronique pendant les impulsions neutroniques du générateur, les effets des écrans sur les rayonnements gamma émis pendant ces impulsions n'ont pas pu être déterminés expérimentalement.

## III.2. Simulation MCNP et comparaison des résultats

Les effets de ces configurations d'écrans simples ont ensuite été étudiés par simulation MCNP [MCNP5], toujours avec le même chronogramme. Les variations des courants totaux (somme sur l'ensemble des faces du détecteur) engendrées par les écrans sont calculées et comparées aux variations des taux de comptage des raies gamma mesurés et reportés dans le Tableau 17.

Les réductions des courants obtenues par simulation MCNP pour les raies gamma promptes de capture radiative des isotopes  $^1\text{H}$  and  $^{12}\text{C}$  peuvent directement être comparées avec les réductions des taux de comptages expérimentaux correspondants. En effet, ces dernières, bien connues et incluses dans la base de données ENDF/B-VII, sont gérées par les simulations MCNP. En ce qui concerne les raies gamma retardées d'activation neutronique, celles-ci ne sont pas produites dans MCNP5, ni dans la version MCNPX 2.4.0 disponible dans le cadre de ces travaux de thèse, et ne peuvent pas être directement comparées aux résultats expérimentaux. On notera toutefois que des versions plus récentes de MCNP incluent des émissions de rayonnements gamma retardées [Durkee09, MCNPX260, MCNP6] et présentent donc un intérêt pour de futurs travaux de R&D, notamment sur les rayonnements gamma retardés de fission (à la suite de ceux présentés au Chapitre III).

Par ailleurs, il faut aussi tenir compte du fait que les isotopes du germanium émettant les rayonnements d'activation à 140 et 197 keV sont non seulement produits par activation par les neutrons rapides via des réactions (n,2n), comme évoqué au paragraphe III.1 précédent, mais également par capture neutronique (voir sections efficaces en Figure 79).

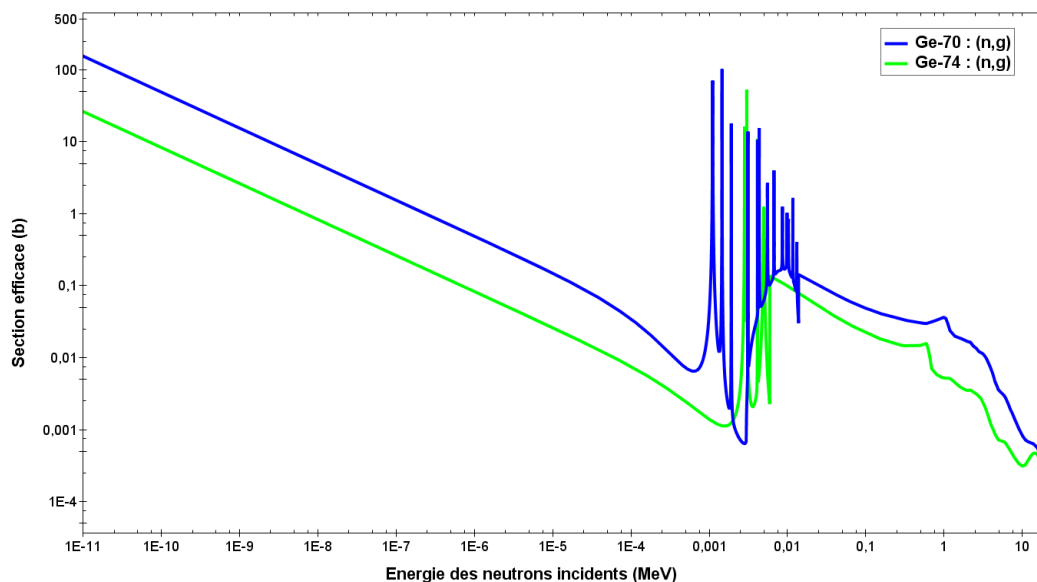


Figure 79. Sections efficaces de capture radiative des isotopes  $^{70}\text{Ge}$  et  $^{74}\text{Ge}$ .

En effet, bien que l'enceinte du détecteur soit recouverte d'un écran de lithium ( $^6\text{Li}$ ) pour réduire le flux de neutrons thermique atteignant le cristal, les simulations réalisées précédemment dans ce chapitre montrent que des neutrons de basses énergies (< 1 keV) atteignent la surface du cristal, notamment par la face avant. Les taux de comptages mesurés des raies gamma émises par les isotopes du germanium ne reflètent donc pas uniquement l'effet des écrans sur la composante

rapide du flux de neutrons. Afin de pouvoir réaliser la comparaison avec les valeurs expérimentales, les simulations ont été reprises de manière à calculer non plus les courants de particules, mais les taux de réaction sur chacun des isotopes d'intérêt  $^{27}\text{Al}(n,p)$ ,  $^{70}\text{Ge}(n,\gamma)$ ,  $^{72}\text{Ge}(n,2n)$ ,  $^{74}\text{Ge}(n,\gamma)$  et  $^{76}\text{Ge}(n,2n)$ . Pour ces nouvelles estimations, la géométrie coaxiale détaillée du cristal a été utilisée (Figure 62). De plus, seulement une fraction des réactions  $(n,\gamma)$  et  $(n,2n)$  produisent les isotopes métastables responsable de l'émission gamma mesurée. Or MCNP calcul le taux de production des isotopes  $^{71}\text{Ge}$  et  $^{75}\text{Ge}$  sans distinction entre les états isomère ou non. Il a donc été décidé de pondérer les taux de réaction calculés par simulation MCNP avec les sections efficaces de production connues de chacun des isomères, afin d'en déduire les taux de production des isotopes  $^{71m}\text{Ge}$  and  $^{75m}\text{Ge}$ , selon les équations (19) et (20):

$$R_{71mGe} = R_{70Ge(n,\gamma)} \times \frac{\sigma_{(n,\gamma)}[^{71m}Ge]}{\sigma_{(n,\gamma)}[^{71m}Ge] + \sigma_{(n,\gamma)}[^{71}Ge]} \times h_{70Ge} + R_{72Ge(n,2n)} \times \frac{\sigma_{(n,2n)}[^{71m}Ge]}{\sigma_{(n,2n)}[^{71m}Ge] + \sigma_{(n,2n)}[^{71}Ge]} \times h_{72Ge} \quad (19)$$

$$R_{71mGe} = 1730 \times 0,082^* \times 0,207 + 680 \times 0,382 \times 0,275$$

\*rapport des sections efficaces de production à l'énergie thermique, voir détails dans le texte ci-dessous

$$R_{75mGe} = R_{74Ge(n,\gamma)} \times \frac{\sigma_{(n,\gamma)}[^{75m}Ge]}{\sigma_{(n,\gamma)}[^{75m}Ge] + \sigma_{(n,\gamma)}[^{75}Ge]} \times h_{74Ge} + R_{76Ge(n,2n)} \times \frac{\sigma_{(n,2n)}[^{75m}Ge]}{\sigma_{(n,2n)}[^{75m}Ge] + \sigma_{(n,2n)}[^{75}Ge]} \times h_{76Ge} \quad (20)$$

$$R_{75mGe} = 520 \times 0,478 \times 0,364 + 1180 \times 0,799 \times 0,077$$

Avec

$R_{A_{Ge}(n,\gamma)}$  : taux de réaction  $(n,\gamma)$  de l'isotope  $^A\text{Ge}$  ( $s^{-1}$ ) calculé avec MCNP ; pour l'application numérique, les résultats MCNP pour la configuration de référence ont été multipliés par le volume du cristal, la densité atomique du germanium et une émission neutronique de  $7,18 \times 10^7 s^{-1}$ ,

$R_{A_{Ge}(n,2n)}$  : taux de réaction  $(n,2n)$  de l'isotope  $^A\text{Ge}$  ( $s^{-1}$ ),

$h_{A_{Ge}}$  : abondance naturelle de l'isotope  $^A\text{Ge}$  [Erdtmann76],

$\sigma_{(n,\gamma)}[^A\text{Ge}]$ ,  $\sigma_{(n,2n)}[^A\text{Ge}]$  : sections efficaces de production des isotopes  $^A\text{Ge}$  [Erdtmann76] ( $A = 71, 71m, 75$ , ou  $75m$ ).

Les sections efficaces  $\sigma_{(n,\gamma)}$  sont tabulées pour des neutrons thermiques ou sous la forme d'une intégrale de résonance au delà de 0,5 eV. Or, les simulations MCNP montrent que plus de 95 % des réactions  $(n,\gamma)$  dans le cristal de germanium sont induites par des neutrons d'énergie supérieure à 1 eV, les neutrons thermiques étant atténués de manière significative par le lithium ( ${}^6\text{Li}$ ) disposé autour du détecteur. Au vu de ces résultats, il a été choisi de considérer les intégrales de résonances. D'autre part, pour l'isotope  ${}^{70}\text{Ge}$ , seule l'intégrale de résonance cumulative (sans distinction entre les isotopes  ${}^{71\text{m}}\text{Ge}$  and  ${}^{71}\text{Ge}$ ) est donnée dans la référence [Erdtmann76]. Par conséquent, le rapport d'embranchement  $\sigma({}^{71\text{m}}\text{Ge}) / (\sigma({}^{71}\text{Ge}) + \sigma({}^{71\text{m}}\text{Ge}))$  des neutrons thermiques a été appliqué, i.e. 0,082.

Les performances de chaque configuration d'écrans sont alors évaluées à partir d'un rapport d'observables. Pour la mesure, il s'agit des taux de comptage des raies gamma considérées, désignées  $O_{ref}^{exp}$  et  $O_{écran}^{exp}$  respectivement pour les configurations originale de la cellule MEDINA et des différents écrans. Pour la simulation, les observables sont les courants de photons ou les taux de réactions neutroniques, désignées  $O_{ref}^{MCNP}$  et  $O_{écran}^{MCNP}$  respectivement pour les configurations originale de la cellule MEDINA et des différents écrans. L'accord entre expérience et simulation est alors évalué à l'aide du rapport:

$$R = \left( \frac{O_{ref}^{MCNP}}{O_{écran}^{MCNP}} \right) \times \left( \frac{O_{ref}^{exp}}{O_{écran}^{exp}} \right)^{-1} \quad (21)$$

Les valeurs de R correspondantes aux moniteurs gamma et neutron sont illustrées respectivement en Figure 80 et Figure 81. Les incertitudes représentées sur ces figures tiennent compte des incertitudes statistiques de mesure et de simulation.

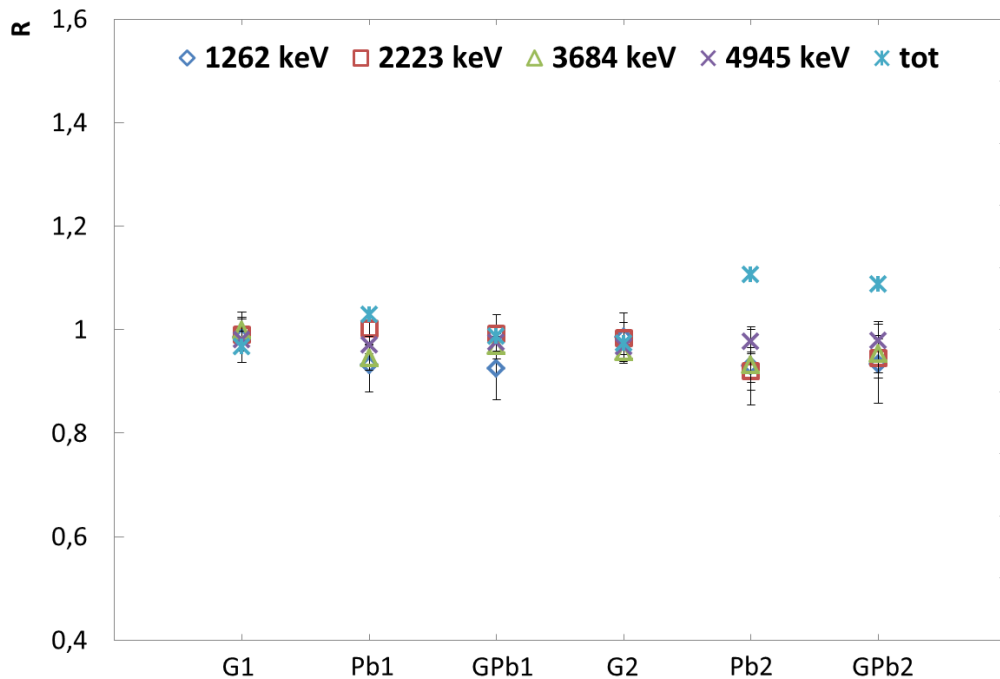


Figure 80. Rapport R de l'équation (21), représentatif de l'accord entre expérience et simulation pour l'efficacité du blindage gamma des configurations de la Figure 76.

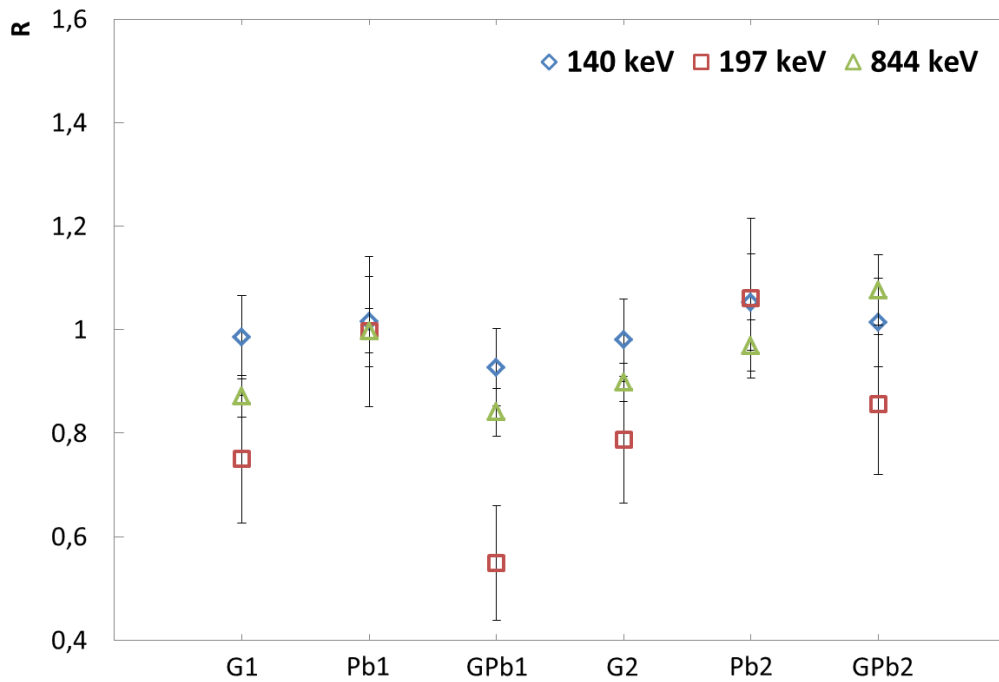


Figure 81. Rapport R de l'équation (21), représentatif de l'accord entre expérience et simulation pour l'efficacité du blindage neutronique des configurations de la Figure 76.

Les résultats de simulation par rapport au bruit de fond gamma sont en accord avec les mesures à  $\pm 20\%$  (Figure 80). Les plus grands écarts entre simulation et expérience sont observés pour les taux de comptage totaux des spectres gamma des configurations Pb2 et GPb2. Ces écarts s'expliquent par la présence d'une grande quantité de plomb (environ 110 kg) proche du détecteur pour ces deux configurations (voir Figure 76), résultant en une contribution significative au taux de comptage due au rayonnement prompt de capture neutronique de l'isotope  $^{207}\text{Pb}$  (raie gamma d'énergie 7368 keV). Or il se trouve que ces rayonnements sont absents des spectres de simulation MCNP, car cette raie ne figure pas dans la base de donnée ENDF/B-VII utilisée ici. Concernant les moniteurs des neutrons rapides, on observe des écarts plus importants entre simulation et expérimentation (Figure 81). Ceux-ci sont principalement dus à l'utilisation d'observables différentes pour la quantification de l'efficacité du blindage des configurations testées. A propos des moniteurs germanium, l'impact sur la raie gamma à 140 keV est reproduit correctement par la simulation, alors que celui sur la raie à 197 keV présente des écarts atteignant près de 50 %. Cette différence provient probablement de l'hypothèse faite sur le rapport  $\sigma(^{71\text{m}}\text{Ge}) / (\sigma(^{71}\text{Ge}) + \sigma(^{71\text{m}}\text{Ge}))$ . En effet, comme nous pouvons le voir dans la référence [Erdtmann76], les rapports d'embranchement relatifs entre les niveaux fondamental et métastable d'autres isotopes du germanium tels que  $^{75}\text{Ge}$  et  $^{75\text{m}}\text{Ge}$ , ou  $^{77}\text{Ge}$  et  $^{77\text{m}}\text{Ge}$ , ne sont pas identiques pour les différents domaines en énergie des neutrons (thermiques et résonances). On notera par exemple qu'avec un rapport arbitraire de 0,25 à la place de celui de 0,082 utilisé ici pour le rapport  $\sigma(^{71\text{m}}\text{Ge}) / (\sigma(^{71}\text{Ge}) + \sigma(^{71\text{m}}\text{Ge}))$ , l'impact sur la raie gamma à 197 keV serait reproduit avec la même concordance que la raie gamma à 140 keV. Les autres données de la référence [Erdtmann76], rapportées dans le Tableau 18, montrent qu'un ratio de 0,25 est tout aussi plausible que celui de 0,082 utilisé.



Tableau 18. Rapports d'embranchement relatifs entre les niveaux fondamental et métastable des isotopes du  $^{75}\text{Ge}$  et  $^{75\text{m}}\text{Ge}$ ,  $^{77}\text{Ge}$  et  $^{77\text{m}}\text{Ge}$  [Erdtmann76].

Energie des neutrons	$\sigma(^{75\text{m}}\text{Ge}) / (\sigma(^{75}\text{Ge}) + \sigma(^{75\text{m}}\text{Ge}))$	$\sigma(^{77\text{m}}\text{Ge}) / (\sigma(^{77}\text{Ge}) + \sigma(^{77\text{m}}\text{Ge}))$
Thermique	0,373	0,648
Epithermique (E > 0,5eV)	0,478	0,388

Une meilleure appréciation des effets des différents écrans par rapport aux neutrons pourrait être obtenue par intégration d'un détecteur de neutrons à proximité du détecteur germanium dans la cellule MEDINA. Une autre possibilité serait de mesurer le rayonnement prompt de collision inélastique induit par les neutrons rapides sur le germanium, ce qui serait envisageable en utilisant une électronique à fort taux de comptage, ou en paramétrant le générateur de neutrons de manière à limiter le taux de comptage pendant l'émission neutronique (émission continue à faible niveau par exemple). D'autre part, il est également envisageable d'améliorer les simulations en intégrant l'émission des rayonnements gamma retardés d'activation neutronique avec les dernières versions de MCNP [MCNPX260, MCNP6]. Néanmoins, la comparaison entre simulation et expérience pour les configurations simples étudiées ici est globalement satisfaisante et permet de valider l'ordre de grandeur des améliorations que des écrans supplémentaires pourraient apporter, c'est-à-dire des réductions de l'ordre d'un facteur 5 et 4 des bruits de fond de neutrons rapides et gamma, respectivement, avec la configuration la plus performantes (F) présentée au paragraphe II.

## IV. Conclusion

Le modèle MCNP de la cellule MEDINA a été utilisé pour étudier la possibilité d'améliorer le blindage neutronique et photonique du détecteur germanium. Le bruit de fond gamma est principalement dû aux réactions de capture radiative induites par des neutrons thermiques sur les isotopes  $^{12}\text{C}$  des murs en graphite de la cellule MEDINA, alors que le bruit de fond neutronique est surtout dû aux neutrons rapides et épithermiques provenant du générateur jusqu'au cristal de germanium, de manière directe ou après diffusion. Dans une moindre mesure, un certain nombre de neutrons de basse énergie atteignent également le cristal de germanium, mais l'écran en lithium 6 autour du détecteur permet de limiter fortement cette contribution.

Les résultats de simulation numérique montrent qu'il est possible de réduire le bruit de fond gamma d'un facteur 4 et le bruit de fond neutronique d'un facteur 5 et 3, respectivement pour les neutrons de haute et basse énergie (respectivement supérieure à 1 MeV et inférieure à 1 keV) pendant les impulsions. Un moindre effet est obtenu au niveau des neutrons de basse énergie entre les impulsions, qui est réduit d'un facteur 2. Il est important de signaler que ces améliorations ont été atteintes sans modification notable des performances actuelles de la cellule de mesure (flux interrogateur, temps de vie des neutrons thermiques, efficacité de détection).

Dans une première étape de validation expérimentale, des configurations simples de blindage du détecteur ont été implémentées dans MEDINA. Les performances de ces blindages au niveau du bruit de fond gamma ont été contrôlées à partir des mesures des rayonnements gamma prompts de capture radiative des isotopes de l'hydrogène et du carbone. Pour les performances du blindage vis-

à-vis des neutrons, les contrôles ont été réalisés à l'aide des rayonnements gamma retardés des produits d'activation de l'aluminium (capot du détecteur) et du cristal de germanium. Ces configurations simples ont ensuite été simulées à l'aide du code MCNP et les performances du blindage estimées à partir des courants de photons et des taux de réactions neutroniques, respectivement pour les bruits de fond gamma et neutron. Les facteurs de réduction simulés étant compatibles avec ceux mesurés, on peut raisonnablement penser que l'implémentation de l'écran le plus efficace, déterminé à partir des simulations numériques, permettrait d'améliorer de façon significative (au moins un facteur 2) les limites de détections actuelles de la cellule MEDINA, présentées dans le Tableau 14 de ce chapitre IV et au paragraphe III.4 du chapitre III, ainsi que le temps d'irradiation du détecteur avant d'observer une détérioration significative de la résolution due aux dommages induits par les neutrons rapides. Alternativement, l'amélioration des blindages gamma et neutronique peut aussi permettre d'augmenter le niveau du flux neutronique interrogateur, autre voie d'amélioration possible des performances de MEDINA.

Enfin, dans le cadre de l'amélioration de l'interprétation des mesures d'activation neutronique, un nouvel outil de spectrométrie gamma développé au CEA LIST, SINBAD [Barat07, Rohée15] a été comparé au logiciel actuellement utilisé, Gamma-W, au niveau de l'extraction des aires nettes (voir Annexe 5). La comparaison réalisée sur un spectre d'activation neutronique pulsée, riche en raies gamma, a permis d'apprécier la rapidité du traitement automatique de SINBAD, permettant une analyse complète en quelques dizaines de minutes contre plusieurs heures pour l'analyse raie par raie à l'aide du logiciel actuel.



# Conclusion

L'objet de cette thèse est l'étude de l'activation neutronique avec un générateur de neutrons pulsé. Cette étude s'est appuyé sur des simulations numériques au moyen du code de transport MCNP et sur des mesures expérimentales, d'une part dans l'optique de qualifier le modèle et d'optimiser la cellule MEDINA (FZJ), et d'autre part pour étudier la faisabilité d'une nouvelle technique de mesure de rayonnements gamma retardés de fission dans des colis de 225 L à partir des rendements d'émission estimés au préalable dans la cellule REGAIN (CEA Cadarache).

Dans un premier temps, les rayonnements gamma prompts de capture neutronique d'échantillons d'éléments purs ou de composés chimiques ont été mesurés sous irradiation pulsée. Ceci a permis d'identifier les raies gamma significatives associées à certains isotopes représentatifs de toxiques chimiques : Al, Be, Cl, Cu, Se, Sr et Ta. Ces résultats expérimentaux ont alors été comparés aux résultats obtenus par simulation avec le code MCNP en deux étapes de calcul. La première de ces deux étapes consiste en une estimation du taux de capture radiative de l'élément d'intérêt dans l'échantillon, divisé en segments concentriques afin de prendre en compte les effets d'atténuation neutroniques et gamma, en utilisant l'estimateur de flux F4 de MCNP, convolué avec la section efficace de capture grâce à la carte FM4. La seconde étape consiste à réémettre au niveau du terme source (carte SDEF) les rayonnements gamma de capture depuis les différents segments de l'échantillon, proportionnellement aux taux de capture précédemment calculés et en appliquant les intensités de production de ces raies issues de tables de données nucléaires. Dans cette deuxième étape de calcul, le spectre gamma est obtenu avec l'estimateur F8 qui fournit l'histogramme des dépôts d'énergie dans le détecteur germanium. Cette approche de calcul s'est avérée nécessaire pour pallier aux lacunes des données de production de ces rayonnements dans les bibliothèques utilisées par MCNP et introduire les données manquantes entre les deux étapes. Ceci a permis d'apprécier l'impact sur l'accord expérience - calcul des bases de données nucléaires en comparant quatre bases de données publiées (ou mises à jour) entre 1981 et 2013. Les bibliothèques les plus récentes (AIEA 2007 et ENSDF 2013), qui donnent des résultats similaires, sont les plus complètes et conduisent globalement au meilleur accord expérience – calcul. Bien que la base de données ENSDF soit régulièrement mise à jour, celle-ci a pour objectif principal l'étude des propriétés des structures du noyau et non les applications de l'activation neutronique pulsée. Le choix de la base de données de l'AIEA, spécifiquement établie pour la mesure des rayonnements gamma de capture radiative, semble donc la plus adaptée. Elle nécessite cependant de recalculer les intensités en fonction de la section efficace de capture radiative et de l'abondance naturelle des différents isotopes. Finalement, les écarts observés entre simulation et expérience sont compris dans une plage de  $\pm 20\%$  pour l'ensemble des raies gamma étudiées [Nicol15]. Les principales sources d'incertitude sont la reproduction des effets de matrice dans certains échantillons à forte absorption neutronique et atténuation gamma, comme par exemple le tantale, la connaissance de l'intensité d'émission du générateur de neutrons, mesurée auparavant dans MEDINA avec une précision de  $\pm 13\%$ , ainsi qu'une grande incertitude statistique sur certaines raies gamma peu intenses et situées sur un continuum Compton élevé en activation neutronique pulsée. L'accord observé permet néanmoins de valider le modèle MCNP de la cellule MEDINA et de l'utiliser pour les études suivantes. Une amélioration possible du modèle serait d'implémenter l'ensemble des données de production des rayonnements gamma prompts dans les bases de données utilisées par MCNP. L'utilisation du code

de transport Monte Carlo TRIPOLI, développé par le CEA [Brun15] serait aussi envisageable après implémentation de ces données.

Le modèle numérique validé de MEDINA a ensuite été utilisé pour étudier les performances de la mesure des rayonnements gamma retardés de fission de l'uranium et du plutonium dans des colis de déchets de 225 L. Pour cela, les rayonnements gamma retardés d'intérêt des isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$  ont d'abord été identifiés grâce à des mesures d'échantillons d'uranium et de plutonium, réalisées avant cette thèse dans la cellule REGAIN du CEA Cadarache [Clamond05]. Les rendements d'émission de ces rayonnements gamma retardés de fission, associés aux isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$ , ont été ici évalués en exploitant les deux types de mesures réalisées selon la période radioactive des produits de fission émetteurs de ces raies, une première entre les impulsions du générateur et une seconde après la fin de l'irradiation pulsée. L'ensemble des rayonnements gamma retardés de fission peut être mesuré après irradiation où le bruit de fond résiduel est moins important que le bruit de fond entre les impulsions. Néanmoins, pour les produits de fission de périodes allant de quelques secondes à quelques minutes, une meilleure statistique de comptage est obtenue entre les impulsions. Au-delà d'une période de 10 min, les rayonnements ont été mesurés après irradiation. La principale source d'incertitude provient de la précision sur la surface nette des pics de faible amplitude ou en interférence avec d'autres raies, qui est de l'ordre de 15 % en moyenne mais peut atteindre 50 % pour certaines raies. Des simulations MCNP ont aussi été réalisées pour déterminer les taux de fission dans les échantillons d'uranium et de plutonium, l'incertitude associée à ces estimations pouvant atteindre 50 % [Nicol16b]. On peut également mentionner l'incertitude sur l'émission neutronique du générateur, qui était de l'ordre de 10 % pour ces travaux [Perot96]. Les rendements d'émission des rayonnements gamma retardés de fission obtenus ont été comparés à des données nucléaires publiées : JEFF3.1 [JEFF05] pour les rendements de fission, multipliés par les intensités gamma issues de [LNHB14, NNDC16]. Les ratios entre rendements mesurés et tabulés se situent dans une plage de 0,7 à 1,55 pour toutes les raies d'intérêt étudiées [Nicol16b], ce qui est satisfaisant compte tenu des incertitudes sur les mesures réalisées dans REGAIN.

Les rendements d'émission des rayonnements gamma retardés de fission mesurés dans REGAIN ont ensuite été utilisés pour estimer, à l'aide du modèle MCNP de MEDINA, la faisabilité de la mesure de la matière fissile répartie de façon homogène dans un colis de déchets de 225 L, contenant une matrice d'enrobé bitumineux ou de béton. Une sensibilité similaire, de l'ordre de quelques dizaines de coups par gramme d'isotope  $^{235}\text{U}$  ou  $^{239}\text{Pu}$  pour 7200 s d'irradiation (et un temps de mesure après irradiation adapté à la période de chaque produit de fission émetteur) est attendue pour ces deux types de matrices caractéristiques de déchets radioactifs produits en France et en Allemagne. Cependant, le haut niveau d'émission gamma des colis bitumés nécessiterait une collimation et l'utilisation d'écrans, ce qui réduirait drastiquement ce signal utile déjà très faible, rendant la mesure impossible. La méthode reste néanmoins prometteuse dans le cas de colis de déchets peu irradiants, comme les déchets bétonnés produits en Allemagne. Pour ce type de matrice, les limites de détection correspondantes ont été estimées en combinant la sensibilité de détection obtenue par simulation avec une mesure du bruit de fond actif d'un colis bétonné maquette dans la cellule MEDINA. Ces limites de détection, comprises entre 10 et 310 g d'isotope  $^{235}\text{U}$  ou  $^{239}\text{Pu}$ , pourraient être améliorées grâce à l'optimisation de l'écrantage du détecteur afin de réduire le bruit de fond gamma. Une réduction du flux de neutrons rapides au niveau du détecteur contribuerait également à l'amélioration des performances de la méthode en permettant l'utilisation d'un générateur d'émission nettement supérieure à celle du GENIE 16 (SODERN) employé actuellement, qui est de

$2 \cdot 10^8$  n/s. Un GENIE 36 permettrait par exemple d'atteindre une émission 10 fois supérieure et d'autres générateurs DT transportables [ADELPHI], ou accélérateurs linéaires d'électrons couplés à des cibles de conversion [Sari12], permettraient d'obtenir des flux de l'ordre de  $10^{10}$  n/s. Une diminution des limites de détection permettrait de vérifier que les déchets radioactifs bétonnés ne dépassent pas le seuil de classification comme combustible nucléaire en Allemagne, qui est de 15 g de matière fissile pour un fût de 200 L.

D'autre part, une autre approche analytique de détermination des limites de détection a été étudiée (annexe 3), s'appuyant sur des paramètres mesurables dans MEDINA. La cohérence avec les limites de détection déterminées précédemment montre que cette approche est valide pour déterminer, en première approximation, l'ordre de grandeur des performances sans avoir recours à des simulations Monte Carlo, plus longues et plus complexes.

Enfin l'étude des rayonnements gamma retardés de fission a montré que l'absence d'information sur la répartition de la matière fissile induirait une incertitude significative sur sa quantification. Un moyen de réduire cette incertitude serait de mesurer les rayonnements gamma retardés émis à plus haute énergie (plusieurs MeV). Cela permettrait également de limiter l'influence du bruit de fond actif ainsi que celui des déchets radioactifs, qui sont sensiblement plus faibles pour ces énergies. Quant à la possible contribution au signal des fissions rapides de l'isotope  $^{238}\text{U}$ , celle-ci ne se révèle significative, de l'ordre de 40 % au maximum, que dans le cas d'uranium appauvri, c'est-à-dire pour des teneurs en isotope  $^{235}\text{U}$  de l'ordre de 0,2 %. Toutefois, même dans les cas où cette contribution ne serait pas négligeable, il serait envisageable de caractériser la masse d'isotope  $^{238}\text{U}$  via sa raie gamma prompt de capture radiative à 4,06 MeV [AIEA07] pour effectuer ensuite une correction. Il est prévu de mesurer à terme dans MEDINA un bloc d'uranium appauvri, ce qui permettrait de tester la faisabilité de cette approche.

Le modèle MCNP de la cellule MEDINA a également été utilisé pour étudier l'amélioration du blindage photonique et neutronique du détecteur germanium en vue de l'amélioration des sensibilités de détection. Il serait ainsi envisageable de réduire le bruit de fond gamma d'un facteur 5 et 4, respectivement, pendant et entre les impulsions. Ceci permettrait d'améliorer les limites de détections actuelles de la cellule MEDINA d'au moins un facteur 2. La réduction de bruit de fond gamma pendant les impulsions neutroniques serait, quant à elle, un premier pas vers la possible détection des rayonnements de diffusions inélastiques induits par les neutrons de haute énergie, pour apporter des informations complémentaires sur la composition des colis de déchets mesurés. En effet, une des difficultés d'une telle mesure réside dans le très fort taux de comptage pendant les impulsions du générateur, responsable d'un temps mort important. Une irradiation continue serait de ce point de vue à tester. Concernant le bruit neutronique pendant les impulsions du générateur, la configuration de blindage envisagée permettrait de réduire d'un facteur 5 et 3, respectivement, les nombres de neutrons de haute énergie ( $> 1$  MeV) et de basse énergie ( $< 1$  keV) atteignant le cristal de germanium. Entre les impulsions, un facteur 2 serait obtenu sur le nombre de neutrons de basse énergie atteignant le cristal, qui est déjà faible en raison de l'écran en lithium enrichi au  $^6\text{Li}$  entourant le capot du détecteur. Le facteur de réduction obtenu pour les neutrons de haute énergie constitue un des apports essentiels du blindage, permettant d'allonger le temps d'opération du détecteur avant dégradation de sa résolution en énergie, ou d'envisager l'utilisation d'une émission neutronique plus intense à l'aide d'un nouveau générateur de neutrons, ou d'un accélérateur d'électrons avec une source de conversion adaptée. L'ensemble de ces améliorations permettrait

notamment de s'approcher des objectifs de l'ANDRA quant à la caractérisation des toxiques chimiques dans les colis de déchets radioactifs, un seuil de déclaration de 1mg/kg (ppm) étant actuellement fixé de façon indicative [ANDRA02].

Par ailleurs, l'implémentation de configurations simples de blindage dans MEDINA a permis d'effectuer une première validation expérimentale des améliorations prévues par simulation MCNP.

Enfin, compte tenu du temps de traitement manuel très long des spectres gamma d'activation neutronique (multitudes de raies gamma), le logiciel SINBAD, développé par le CEA-LIST [Barat07, Rohé15] et basé sur une approche bayésienne non paramétrique, a été testé pour tendre vers un traitement plus rapide et automatique. Les résultats sont en bon accord avec un traitement manuel à partir des logiciels du commerce et ont permis une réduction du traitement de quelques heures à quelques dizaines de minutes, pour ces premiers essais.

# Perspectives

A la suite de ces travaux de thèse, plusieurs perspectives d'optimisation technique et d'application de l'activation neutronique sont envisageables.

Au vu des résultats obtenus dans le dernier chapitre concernant l'optimisation du blindage du détecteur, la configuration la plus prometteuse sera implémentée progressivement dans MEDINA. Des blocs en graphite puis l'entourage du détecteur en plomb seront réalisés dans un premier temps et les performances d'écrantage correspondantes seront mesurées expérimentalement. Afin de contrôler au mieux les flux de neutrons rapides et thermiques, ainsi que l'impact du blindage sur ceux-ci, il est envisageable d'incorporer, à l'intérieur de MEDINA, des détecteurs de neutrons adaptés à ces gammes d'énergie, par exemple des compteurs proportionnels gazeux à  $^3\text{He}$  pour les neutrons thermiques et des scintillateurs organiques pour les neutrons rapides. Ensuite, du polyéthylène enrichi en  $^6\text{Li}$  pourra être ajouté comme écran neutronique supplémentaire. Si le nouveau blindage permet une réduction significative du taux de comptage et donc du temps mort pendant les périodes d'irradiation, des mesures de rayonnement gamma prompt de collision inélastique pourront aussi être envisagées. Néanmoins, il sera probablement nécessaire d'utiliser une nouvelle électronique capable de supporter des forts taux de comptage, comme le système ADONIS développé par le CEA LIST [Barat13]. Des études supplémentaires en irradiation continue pourront aussi être réalisées dans cette optique, afin de limiter le taux de comptage crête par rapport à une irradiation pulsée. Par la suite, le générateur de neutrons pourra être remplacé afin de disposer d'une intensité d'émission supérieure dans le but d'améliorer encore les limites de détection. Le blindage optimisé contre les neutrons rapides revêtira alors une importance cruciale pour éviter une dégradation rapide de la résolution en énergie du détecteur germanium.

Une autre modification envisageable de la cellule MEDINA serait l'ajout de détecteurs pour mesurer les neutrons prompts et retardés de fission, afin de disposer d'une cellule mixte permettant à la fois des mesures d'interrogation neutronique active [Raoux03] en plus de l'activation neutronique pulsée. Une telle combinaison permettrait d'augmenter de manière significative les limites de détection des isotopes fissiles, mais il faudra veiller à conserver les performances de détection des éléments non radioactifs. En effet, ces blocs de détection neutronique comportant du cadmium ou du bore [Perot96], il serait difficile de caractériser ces toxiques chimiques dans le colis mesuré, aussi la modularité de la cellule devra être prise en compte, avec si possible des blocs amovibles.

D'autre part, l'étude de faisabilité sur la mesure des rayonnements gamma retardés de fission a ouvert une voie de R&D pour la reprise de déchets anciens et volumineux tels que les fûts de 870 L du CEA. L'estimation de la quantité de matière fissile dans ce type de colis est essentielle afin d'assurer la sécurité des transports et des entreposages, en attendant leur stockage à CIGEO. De nouveaux travaux de thèse sont actuellement envisagés sur cette thématique, notamment l'exploitation des raies de haute énergie (plusieurs MeV) pour limiter les effets d'atténuation. Les prochaines simulations pourront être réalisées en générant directement les rayonnements gamma retardés de fission, mais aussi ceux d'activation qui constituent le bruit de fond, grâce aux nouvelles versions de MCNP [MCNP6] et MCNPX [MCNPX260].



Néanmoins, comme pour les rayonnements gamma prompts, il est possible que les bibliothèques utilisées par le code MCNP présentent des lacunes pour certains isotopes. Il sera donc nécessaire d'effectuer un calcul en deux étapes, comme expliqué précédemment. Afin de reproduire au mieux les phénomènes d'atténuation neutron et gamma, il pourra être envisagé d'implémenter un programme permettant d'effectuer automatiquement une segmentation optimale de l'objet mesuré en fonction de ses paramètres physiques et géométriques. De plus, un second programme pourra être envisagé afin de définir de manière automatique la source de photons gamma pour la seconde étape, à partir des taux de réactions issus de la première étape.

Finalement, bien que le but premier de la cellule MEDINA soit la caractérisation des toxiques chimiques dans les colis de déchets radioactifs, son domaine d'application potentiel pour la caractérisation élémentaire est donc bien plus vaste. Par exemple, ce type de mesure peut également s'appliquer à l'identification de la nature chimique des principaux composants des matrices des colis de déchets, notamment en vue de la correction des effets de modulation et d'absorption neutronique (H, Cl, B, Cd...) [Loche06]. Ceci représente un intérêt considérable pour le traitement des déchets anciens.

Dans le domaine de l'assainissement et du démantèlement, en plus du contrôle d'absence de contamination radiologique, il peut également être nécessaire d'identifier la nature chimique de substances inconnues potentiellement toxiques.

De nombreux secteurs hors nucléaire peuvent également être intéressés par ce type de mesure. On pourra notamment relever l'intérêt industriel de valoriser des déchets conventionnels comme, par exemple, des terres rares récupérées dans les déchets électroniques. Cette problématique est d'autant plus importante que ces matières premières représentent un enjeu majeur pour le futur, du fait de leur rareté et de leur utilisation croissante avec le développement des nouvelles technologies [EU10, 15]. Les déchets électroniques représentent également un enjeu environnemental à cause du risque de pollution engendré par leur stockage. Toujours sur le plan environnemental, l'activation neutronique permet de contrôler la pollution des eaux et des sols [Khelifi07]. D'un point de vue de la sécurité nationale, cette méthode de caractérisation peut s'avérer utile pour la détection d'armes chimiques ou d'explosifs [Vourvopoulos01]. Par exemple, dans le cas d'opération de déminage il est essentiel de s'assurer de l'absence de substances nocives comme des toxiques de guerre [Bach93]. Notons aussi que l'activation neutronique est employée pour la caractérisation en ligne des crus cimentiers [Womble05] et que ce type de méthode se développe également pour la caractérisation en ligne du charbon [Sowerby09], pour la prospection minière, gazière et pétrolière [Nikitin10]. De façon anecdotique, on peut aussi signaler des tests récents de contrôle qualité de l'alimentation animale [Elias15]. On pourra remarquer, cependant, que l'application des méthodes de caractérisation par activation neutronique dans certains des domaines cités précédemment peut s'avérer complexe, car elle nécessite des autorisations réglementaires parfois difficiles à obtenir pour une utilisation en dehors du domaine nucléaire. En effet, dans différents pays comme la France, la législation ne permet pas, en dehors d'un cadre précis, l'activation des biens de consommation et des produits de construction.

Malgré cette contrainte, l'activation neutronique reste une technique très attractive car permettant l'analyse non destructive d'un grand nombre d'éléments chimiques, y compris des matières nucléaires, dans des échantillons massifs comme des colis de déchets radioactifs de

plusieurs centaines de litres. Le champ d'applications potentiel est donc très vaste. De plus, si la cellule MEDINA est modifiée pour permettre aussi la détection des neutrons prompts et retardés de fission, comme évoqué plus haut et schématisé sur la vue d'artiste ci-dessous, la mesure des matières nucléaires pourra se faire avec deux techniques complémentaires (détection des rayonnements gamma et des neutrons de fission).

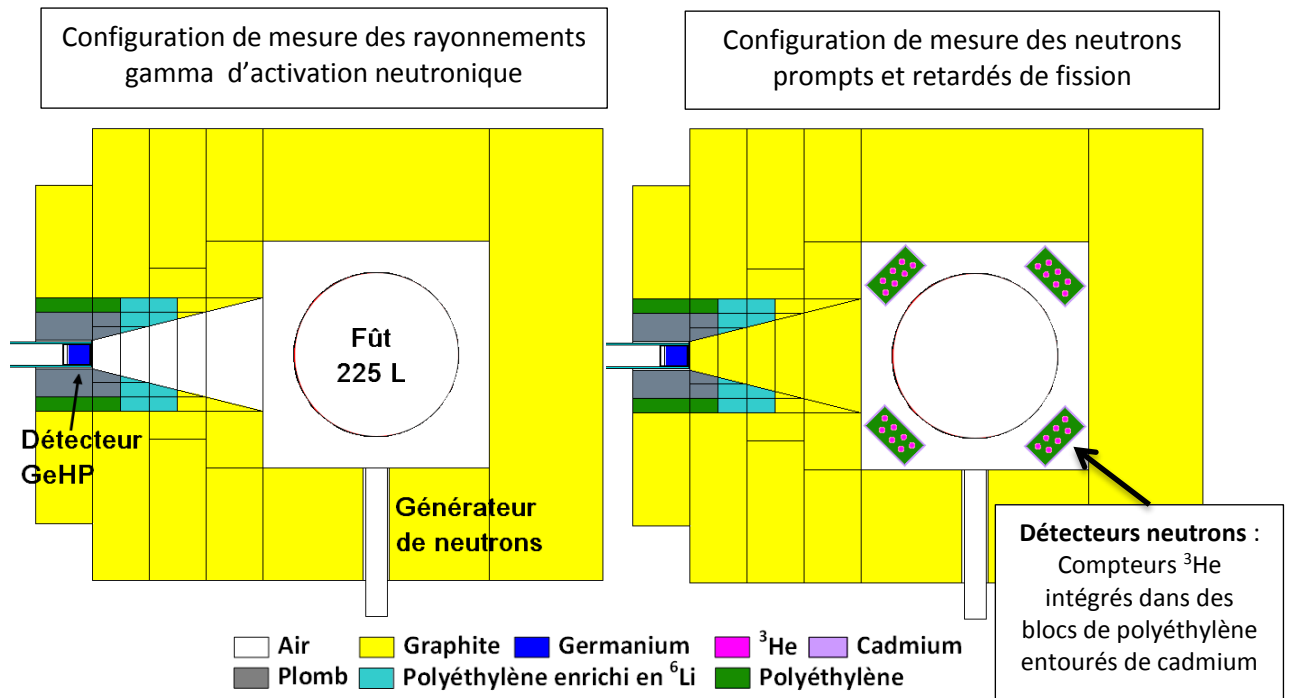


Figure 82. Les deux configurations de mesure d'une cellule MEDINA modulaire (à gauche pour la mesure des rayonnements gamma d'activation, à droite pour celle des neutrons de fission).



# Références bibliographiques

- [ADELPHI] ADELPHI DT110-14 MeV Neutron Generator, extrait de <http://www.adelphitech.com/products/dt110.htm>
- [AIEA03] Agence Internationale de l'Energie Atomique, "Management of low and intermediate level radioactive wastes with regard to their chemical toxicity", 2003 <http://www-pub.iaea.org/books/IAEABooks/6469/Management-of-Low-and-Intermediate-Level-Radioactive-Wastes-with-Regard-to-their-Chemical-Toxicity>
- [IAEA07] International Atomic Energy Agency, "Database of Prompt Gamma Rays from Slow Neutron Capture for Elemental Analysis", 2007, <http://www-pub.iaea.org/books/IAEABooks/7030/Database-of-Prompt-Gamma-Rays-from-Slow-Neutron-Capture-for-Elemental-Analysis>
- [ANDRA02] Agence Nationale pour la gestion des Déchets Radioactifs, "projet HAVL synthèse justificative du modèle d'inventaire de dimensionnement", C.NT.AHVL.02.123, 2002
- [ANDRA09] Agence Nationale pour la gestion des Déchets Radioactifs, "Options de sûreté du stockage en formation géologique profonde", C.NT.ASSN.09.0029.B, 2009
- [ANDRA15] Agence Nationale pour la gestion des Déchets Radioactifs, "Catalogue descriptif des familles 2015", Inventaire national des matières et déchets radioactifs, 2015
- [ASN08] Agence de Sûreté Nucléaire, "Third National Report on compliance with the Joint Convention Obligations", 2008, <https://curie.ornl.gov/content/third-national-report-compliance-joint-convention-obligations-joint-convention-safety-spent>
- [ASN13] Agence de Sûreté Nucléaire, "Plan national de gestion des matières et des déchets radioactifs 2013-2015" <http://www.asn.fr/Informer/Dossiers/La-gestion-des-dechets-radioactifs/Plan-national-de-gestion-des-matieres-et-dechets-radioactifs/PNGMDR-2013-2015>
- [Atanackovic07] J. Atanackovic, J. Grinyer, D.R. Chettle, S.H. Byun, "The comparison of two MCNP models used for prompt gamma in vivo detection of cadmium and mercury", Nuc. Instrum. Meth. B, Vol. 263, pp. 169-174, 2011
- [Bach93] P. Bach, J.L. Ma, "Chemical weapons detection by fast neutron activation analysis techniques", Nucl. Instrum. Meth. B, Vol. 79, pp. 605-610, 1993
- [Barat07] E. Barat, T. Dautremer, T. Montagu, "Nonparametric Bayesian Inference in Nuclear Spectrometry", IEEE Nuclear Science Symposium conference record, Honolulu, Hawaiï, Oct. 26<sup>th</sup> - Nov. 3<sup>rd</sup> 2007
- [Baudry03] G. Baudry, "Correction des effets de matrice par spectrométrie des rayonnements gamma de capture : application à la mesure par Interrogation Neutronique Active (I.N.A.)", Thèse de doctorat en physique, Strasbourg : Université Louis Pasteur Strasbourg I, 2003, 173 p

- [Beddingfield98] D.H. Beddingfield, F.E. Cecil, "Identification of fissile materials from fission product gamma-ray spectra", Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A, vol. 417, pp. 405-412, 1998.
- [Bergaoui14] K. Bergaoui, N. Reguigui, C.K. Gary, C. Brown, J.T. Cremer, J.H. Vainionpaa, M.A. Piestrup, "Monte Carlo simulation of explosive detection system based on a Deuterium–Deuterium (D-D) neutron generator", Appl. Radiat. Isotopes, Vol. 94, pp. 118-124, 2014
- [BFS15a] Bundesamt für Strahlenschutz  
[http://www.bfs.de/EN/topics/nwm/waste/types/types\\_node.html](http://www.bfs.de/EN/topics/nwm/waste/types/types_node.html)
- [BFS15b] Bundesamt für Strahlenschutz  
[http://www.bfs.de/EN/topics/nwm/repositories/repositories\\_node.html](http://www.bfs.de/EN/topics/nwm/repositories/repositories_node.html)
- [Blaauw01] M. Blaauw, R.F. Fleming, R. Keyser, "Digital signal processing and Zero Dead Time counting", J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 248, pp. 309-313, 2001
- [Blaauw03] M. Blaauw, "Experimental tests of zero dead time gamma-ray spectrometry of rapidly decaying sources with the DSPEC<sup>PLUS</sup>™", J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 257, pp. 457-462, 2003
- [Borsaru01] M. Borsaru, M. Biggs, W. Nichol, F. Bos, "The application of prompt-gamma neutron activation analysis to borehole logging for coal", Appl. Radiat. Isotopes, Vol. 54, pp. 335-343, 2001
- [Borsaru04] M. Borsaru, M. Berry, M. Biggs, A. Rojca, "In situ determination of sulphur in coal seams and overburden rock by PGNAA", Nucl. Instrum. Meth. B, Vol. 213, pp. 530-534, 2004
- [Borsaru06a] M. Borsaru, C. Smitha, J. Merritt, T. Aizawa, A. Rojca, "In situ determination of salinity by PGNAA", Appl. Radiat. Isotopes, Vol. 64, pp. 630–637, 2006
- [Borsaru06b] M. Borsaru, B. Zhou, T. Aizawa, H. Karashimac, T. Hashimoto, "Automated lithology prediction from PGNAA and other geophysical logs", Appl. Radiat. Isotopes, Vol. 64, pp. 272-282, 2006
- [Boyer06] S. Boyer, E. Berthoumieux, D. Doré, D. Ridikas, X. Ledoux, F. Carrel, M. Gmar, B. Poumarède, "Delayed gammas detection technique for nuclear waste characterization", Proceedings of NEMEA 3, 2006
- [Brun15] E. Brun, F. Damian, C.M. Diop, E. Dumonteil, F.X. Hugot, C. Jouanne, Y.K. Lee, F. Malvagi, A. Mazzolo, O. Petit, J.C. Trama, T. Visonneau, A. Zoia, "TRIPOLI-4®, CEA, EDF and AREVA reference Monte Carlo code", Ann. Nucl. Energy, Vol. 82, pp. 151-160, 2015
- [Caffrey92] A.J. Caffrey, J.D. Cole, R.J. Gehrke, R.C. Greenwood, "Chemical Warfare Agent and High Explosive Identification by Spectroscopy of Neutron-Induced Gamma Rays", T. Nucl. Sci., VOL. 39, 1992
- [Campbell10] L. Campbell, A. Misner, E. L. Smith, S. Reese, J. Robinson, "High-energy Delayed Gamma Spectroscopy for Plutonium Assay of Spent Fuel", Technical, Pacific Northwest National Laboratory, International Atomic Energy Agency, Oregon State University: Richland, Vienna, Corvallis, 2010

- [Campbell11] L.W. Campbell, L.E. Smith, A.C. Misner, "High-Energy Delayed Gamma Spectroscopy for Spent Nuclear Fuel Assay", IEEE Trans. Nucl. Sci., Vol. 58, 2011
- [Capgam13] Thermal Neutron Capture Gamma database (CapGam)  
<http://www.nndc.bnl.gov/capgam/index.html>
- [Carasco16] C. Carasco, B. Pérot, A. Mariani, N. Saurel, S. Colas, "Beryllium characterization in powders containing plutonium by photoneutron activation analysis using a  $^{124}\text{Sb}$  gamma source", J. Rad. Nucl. Chem., 2015, DOI: 10.1007/s10967-015-4451-4
- [Carrel06] F. Carrel, M. Gmar, F. Lainé, J. Loridon, J.L. Ma and Cssard, "Identification of actinides inside nuclear waste packages by measurement of fission delayed gammas", IEEE Nuclear Science Symposium conference record, San Diego, California, Oct. 29th - Nov. 04th 2006
- [Carrel07] F. Carrel, « Etude et développement d'une technique de dosage des actinides dans les colis de déchets radioactifs par interrogation photonique ou neutronique active et spectrométrie des gamma retardés », Thèse de doctorat en Sciences de la matière et Génie des procédés, Université de Caen/Basse-Normandie, 2007
- [Carrel10a] F. Carrel, M. Agelou, M. Gmar, F. Lainé, B. Poumarède and B. Rattoni, "Measurement of plutonium in large concrete radioactive waste packages by photon activation analysis", IEEE Trans. Nucl. Sci., vol. 57, no. 6, 2010
- [Carrel10b] F. Carrel, M. Agelou, M. Gmar, F. Lainé, J. Loridon, J.L. Ma, C. Passard and B. Poumarède, "Identification and Differentiation of actinides inside nuclear waste packages by measurement of delayed gammas", IEEE Trans. Nucl. Sci., vol. 57, no. 5, pp. 2862-2871, 2010
- [Carrel11a] F. Carrel, M. Agelou, M. Gmar, F. Lainé, "Detection of high-energy delayed gammas for nuclear waste packages characterization", Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A, vol. 652, pp. 137-139, 2011
- [Carrel11b] F. Carrel, M. Agelou, M. Gmar, F. Lainé, J. Loridon, J.L. Ma, C. Passard, B. Poumarède "New experimental results on the cumulative yields from thermal fission of  $^{235}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$  and from photofission of  $^{235}\text{U}$  and  $^{238}\text{U}$  induced by bremsstrahlung", IEEE Trans. Nucl. Sci., vol. 58, no. 4, 2011
- [Chadwick06] M.B. Chadwick et al., Next generation evaluated nuclear data library for nuclear science and technology. Nucl Data Sheets 107:2931–3060, 2006
- [Charbucinski03] J. Charbucinski, J. Malos, A. Rojc, C. Smith, "Prompt gamma neutron activation analysis method and instrumentation for copper grade estimation in large diameter blast holes", Appl. Radiat. Isotopes, Vol. 59, pp. 197–203, 2003
- [Charbucinski04] J. Charbucinski, O. Duran, R. Freraut, N. Heresi, I. Pineyro, "The application of PGNAA borehole logging for copper grade estimation at Chuquicamata mine", Appl. Radiat. Isotopes, Vol. 60, pp. 771–777, 2004

- [Chivers11] D.H. Chivers, K. Alfonso, B.L. Goldblum, B. Ludewigt, "Novel methodology for the quantitative assay of fissile materials using temporal and spectral b-delayed c-ray signatures", Nucl. Instrum. Meth B, Vol. 269, pp. 1829-1835, 2011
- [CIGEO12] Centre Industriel de stockage Géologique, France, <http://www.xn--cigo-dpa.com/>
- [Clamond05] E. Clamond-Brackx, "Potentialité de la spectrométrie gamma active pour le dosage de l'iode et la différenciation U/Pu", mémoire présenté en vue d'obtenir le diplôme d'ingénieur du Conservatoire National des Arts et Métiers en Sciences et Technologies Nucléaires, 2006, 139 p
- [Dep98] L. Dep, M. Belbot, G. Vourvopoulos, S. Sudar, "Pulsed neutron-based on-line coal analysis", J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 234, pp. 107-112, 1998
- [Dighe14] P.M. Dighe, A. Goswami, D. Das, K.C. Mittal, C.K. Pithawa, "Quantification of fissionable materials in pure and mixed form using photofission", Nucl. Instrum. Meth. A, Vol. 737, pp. 242-247, 2014
- [Dodd67] P. H. Odd, R. F. Bmullad, C. P. Lathan, "Borehole logging methods for exploration and evaluation of uranium deposits", 1967
- [Donzella07] A. Donzella, I. Bodini, A. Zenoni, A. Fontana, B. Perot, S. Bernard, C. Carasco, A. Mariani, D. Sudac, V. Valkovic, "Experimental validation of MCNP simulations for the EURITRACK Tagged Neutron Inspection System", Nucl. Instrum. Meth. B, Vol. 261, pp. 291-294, 2007
- [Dulloo98] A.R. Dulloo, F.H. Ruddy, T.V. Congedo, J.G. Seidel, "Detection Limits of a Laboratory Pulsed Gamma Neutron Activation Analysis System for the Nondestructive Assay of Mercury, Cadmium, and Lead", Nucl. Tech., Vol. 123, pp. 103-112, 1998
- [Dulloo99] A.R. Dulloo, "PGNAA System for the Assay of RCRA Metals in Mixed Waste: A Review," Proc. 1999 Industry Partnerships to Deploy Environmental Technology Conference, Morgantown, paper 1.2, October 12-14, 1999
- [Dulloo00] A.R. Dulloo, F.H. Ruddy, T.V. Congedo, J.G. Seidel, M.E. McIlwain, "Experimental verification of modeling results for a PGNAA system for nondestructive assay of RCRA metals in drums", Appl. Radiat. Isotopes, Vol. 53, pp. 499-505, 2000
- [Dulloo01] A.R. Dulloo, T.V. Congedo, F.H. Ruddy, J.G. Seidel, W.S. William, "Pulsed gamma neutron activation analysis (PGNAA) method and apparatus for non-destructive assay of containerized contaminants", brevet international WO 01/07888 A2, 2001.
- [Dulloo04] Dulloo, A. R., F.H. Ruddy, J.G. Seidel, S. Lee, B. Petrovi, M.E. McIlwain, "Neutron Fluence Rate Measurements in a PGNAA 208-Liter Drum Assay System Using Silicon Carbide Detectors," Nucl. Instrum. Meth. B, Vol. 213, pp. 400-405, 2004.
- [Durkee09] J.W. Durkee, Jr., M.R. James, G.W. McKinney, H.R. Trelue, L.S. Waters, W.B. Wilson, "Delayed-gamma signature calculation for neutron-induced fission and activation using MCNPX", (Part I, II and III), Prog. Nucl. Energ., Vol 51, pp 813-844, 2009

- [Eleon10] C. Eleon, B. Perot, C. Carasco, "Preliminary Monte Carlo calculations for the UNCOSS neutron-based explosive detector", Nucl. Instrum. Meth. A, Vol. 619, pp. 234-239, 2010
- [Elias15] C. Elias, A. Koster-Ammerlaan, E.A. De Nadai Fernandes, P. Bode, M. Arruda Bacchi, "Instrumental neutron activation analysis of kilogram-sized samples of dog food", J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 306, pp. 617-621, 2015
- [ENSDF15] Evaluated Nuclear Structure Data File (ENSDF) <http://www.nndc.bnl.gov/ensdf/>
- [Erdtmann76] G. Erdtmann, Kernchemie in Einzeldarstellungen, Vol.6, Neutron Activation Tables, Weinheim, New-York, Verlag Chemie, 1976
- [EU10] Commission européenne, Rapport du Groupe de travail ad hoc sur la définition de matières premières critiques, "Critical raw materials for the EU", 2010
- [EU15] Parlement européen, Direction Générale des Politiques Internes, Département A : politique économique et scientifique, "Recovery of Rare Earths from Electronic wastes: An opportunity for High-Tech SMEs", 2015
- [Failey79] M. P. Failey, D. L. Anderson, W. H. Zoller, G. E. Gordon, R. M. Lindstrom, "Neutron-Capture Prompt  $\gamma$ -Ray Activation Analysis for Multielement Determination in Complex Samples", Anal. Chem., Vol. 51, 1979
- [Firestone05] R.B. Firestone, G.A. English, J. Reijonen, F. Gicquel, K-N. Leung, D. L. Perry, G. Garabedian, B. Bandong, Zs. Révay, G. L. Molnár, "Analysis of fissile materials by high-energy neutron-induced fission decay gamma-rays" J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 265, pp. 241-245, 2005
- [Frankle97] S.C. Frankle, J. G. Conaway, "MCNP TM Simulations for Identifying Environmental Contaminants Using Prompt Gamma Rays from Thermal Neutron Capture Reactions", Appl. Radiat. Isotopes, Vol. 48, pp. 1337-1341, 1997
- [Galinha11] C. Galinha, H.M. Anawar, M.C. Freitas, A.M.G. Pacheco, M. Almeida-Silva, J. Coutinho, B. Maçãs, A.S. Almeida, "Neutron activation analysis of wheat samples", Appl. Radiat. Isotopes, Vol. 69, pp. 1596-1604, 2011
- [Gardner98] R. P. Gardner, P. Guo, A. Sood, C. W. Mayo, R. J. Gehrke, C. L. Dobbs, "Monte Carlo aided treatments of the nonlinear inverse PGNA measurement problem for various continuous on-line applications", J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 233, pp. 105-107, 1998
- [Gehrke97] R.J. Gehrke, G.G. Streier, "Performance test Results of Noninvasive Characterization of Resource Conservation and Recovery Act Surrogate Waste by Prompt Gamma Neutron Activation Analysis" Report INEL/EXT-97-00141, Idaho National Engineering and Environmental Laboratory, Idaho Falls, Id., 1997
- [Gilmore08] G. Gilmore, "Practical gamma-ray spectrometry", 2<sup>nd</sup> edition, 2008
- [Givens70] W.W. Givens, W.R. Mills, R.L. Cadwell, "Cyclic activation analysis", Nucl. Instrum. Method., Vol. 80, pp.95-103, 1970



- [Gmar99] M. Gmar and J.M. Capdevila, "Use of delayed gamma spectra for detection of actinides (U, Pu) by photofission", Nucl. Instrum. Meth. A, vol. 422, pp. 841-845, 1999
- [Gmar06] M. Gmar, E. Berthoumieux, S. Boyer, F. Carrel, D. Doré, M.L. Giacri, F. Lainé, B. Poumarède, D. Ridikasb, A. Van Lauwe, "Detection of nuclear material by photon activation inside cargo containers", SPIE Defense and Security Symposium, Orlando, Floride (USA), 17 – 21 April 2006
- [Gozani07] T. Gozani, D. Strellis, "Advances in neutron based bulk explosive detection", Nucl. Instrum. Meth. B, Vol. 261, pp. 311-315, 2007
- [Gozani09] T. Gozani, "Fission signatures for nuclear material detection", IEEE Trans. Nucl. Sci., vol. 56, no. 3, pp. 736-741, 2009
- [Gozani13] T. Gozani, J. Bendahan, M.J. King, C. Brown, M. Elsalim, E. Elias, "Differential Time of Flight Technique for the Detection of Special Nuclear Materials", IEEE Trans. Nucl. Sci., vol. 60, no. 2, pp. 1118-1125, 2013
- [Gräfe10] J.L. Gräfe, F.E. McNeill, S.H. Byun, D.R. Chettle, M.D. Noseworthy, "A benchmarked MCNP model of the in vivo detection of gadolinium by prompt gamma neutron activation analysis", Nucl. Instrum. Meth. B, Vol. 268, pp. 2451–2457, 2010
- [Gräfe11] J.L. Gräfe, F.E. McNeill, S.H. Byun, D.R. Chettle, M.D. Noseworthy, "The feasibility of in vivo detection of gadolinium by prompt gamma neutron activation analysis following gadolinium-based contrast-enhanced MRI", Appl. Radiat. Isotopes, Vol. 69, pp. 105-111, 2011
- [GTN5] Groupe de Travail de Normalisation n°5 du comité d'instrumentation de radioprotection, "Détermination du seuil et de la limite de détection en spectrométrie gamma », Rapport CEA-R-5506,
- [Harms67] J. Harms, "Automatic dead-time correction for multichannel pulse-height analyzers at variable counting rates", Nucl. Instrum. Meth., Vol. 53, pp. 192-196, 1967
- [Havenith15] A. Havenith, Stoffliche Charakterisierung radioaktiver Abfallprodukte durch ein Multi-Element-Analyseverfahren basierend auf der instrumentellen Neutronen-Aktivierungs-Analyse – MEDINA – Schriften des Forschungszentrum Jülich, Energie & Umwelt / Energy & Environment, Band/Volume 248, ISBN 978-3-95806-033-2, 2015
- [Hollas86] C.L. Hollas, D.A. Close and C.E. Moss, "Analysis of fissionable material using delayed gamma rays from photofission", Los Alamos Laboratory Report, LA-UR-86-3363, 1986.
- [Howel00] S.L. Howell, R.A. Sigg, F.S. Moore, T.A. DeVol, "Calibration and validation of Monte Carlo model for PGNA of chlorine in soil", J. Radioanal. Nucl. Ch., Vol. 244, pp. 173-178, 2000
- [Idiri10] Z. Idiri, H. Mazrou, A. Amokrane, S. Bedek, "Characterization of an Am–Be PGNA set-up developed for in situ liquid analysis: Application to domestic waste water and industrial liquid effluents analysis", Nucl. Instrum. Meth. B, Vol. 268, pp. 213-218, 2010

- [Islam11] M. A. Islam, H. Matsue, M. Ebihara, "Sensitivity Variation for H, B, Si, Cl, Ca and Cd in Solid Materials by Prompt Gamma-ray Analysis with a Special Emphasis on the Presence of Hydrogen", *Anal. Sci.*, Vol. 27, pp. 1143-1147, 2011
- [Iyengar13] A. Iyengar, E.B. Norman, C. Howard, C. Angell, A. Kaplan, J.J. Ressler, P. Chodash, E. Swanberg, A. Czeszumka, B. Wang, R. Yee, H.A. Shugart, "Distinguishing fissions of  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{237}\text{Np}$  and  $^{238}\text{U}$  with beta-delayed gamma rays", *Nucl. Instrum. Meth. B*, Vol. 304, pp. 11–15, 2013
- [JAEA16] Table de données nucléaires de l'agence de l'énergie atomique japonaise, section efficaces et intégrale de résonance de la base de données JENDL-4.0, extraites de <http://www.ndc.jaea.go.jp/NuC/index.html>
- [JANIS12] Bases de données de rendement de fission, JANIS, Java-based NuclearData Information System, AEN, NEA-version3.4 (2012), extrait de [http://www.oecd-nea.org/dbdata/data/nds\\_eval\\_libs.htm](http://www.oecd-nea.org/dbdata/data/nds_eval_libs.htm)
- [JC215] John Caunt Scientific Ltd., lithium polyethylene neutron shielding, retrieved from <http://www.johncaunt.com/shielding/neutron-shielding/jc215-lithium-poly/>
- [JEFF05] Nuclear Energy Agency, JEFF-3.1 evaluated data library, Extrait de [https://www.oecd-nea.org/dbforms/data/eva/evatapex/jeff\\_31/](https://www.oecd-nea.org/dbforms/data/eva/evatapex/jeff_31/)
- [Jensen81] D.H. Jensen, D.R. Humphreys, W.A. Stephenson, J.H. Weinlein, H.M. Bivens, "Pulsed Neutron Gamma Ray Logging for Minerals Associated with Uranium", *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, Vol. NS-28, No. 2, 1981
- [Jordan08] K.A. Jordan, J. Vuljic, T. Gozani, "Remote thermal neutron die-away measurements to improve differential die-away analysis", *Nucl. Instrum. Meth. A.*, vol. 589, pp. 436-444, 2008
- [Karouji08] Y. Karouji and M. EBIHARA, "Reliability of Prompt Gamma-ray Analysis for the Determination of Na and Mg in Rock Samples", *Anal. Sci.*, Vol. 24, pp. 659-663, 2008
- [Kavouras12] J.G. Kavouras, X. Wen, D.R. Norman, D.R. Nakazawa, H. Yang, "Pulsed Photofission Delayed Gamma Ray Detection for Nuclear Material Identification", *IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference Record (NSS/MIC)*, 2012
- [Kavouras14] J.G. Kavouras, "Detection and simulation of delayed  $\gamma$ -rays from photofission", Master of Science, The University of Utah, 2014
- [Kettler07] J. Kettler, Y. Bai, E. Mauerhofer, R. Nabbi, R. Odoj, "Modeling of a prompt gamma neutron activation system for non-destructive determination of toxic elements in radioactive waste packages", Scientific report 2007, Institute for Energy Research-Safety Research and Reactor Technology (IEK-6), Safety Research for Nuclear Waste Disposal, 2007
- [Kettler13] J. Kettler, E. Mauerhofer, M. Steinbusch, "Detection of unexploded ordnance by PGNAAP based borehole-logging", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, Vol. 295, pp. 2071-2075, 2013
- [Keyser01] R.M. Keyser, T.R. Twomey, R.D. Bingham, "Performance of the Zero-Dead-Time Mode of the DSPEC Plus", Technical papers Ortec

- [Khelifi07] R. Khelifi, A. Amokrane, P. Bode, "Detection limits of pollutants in water for PGNA using Am-Be source", Nucl. Instrum. Meth. B, Vol. 262, 329-332, 2007
- [Knoll10] G.F. Knoll, "Radiation Detection and Measurement, fourth edition", 2010
- [Latif13] Sk. A. Latif, Y. Oura, M. Ebihara, H. Nakahara, "Non-destructive elemental analysis of large meteorite samples by prompt gamma-ray neutron activation analysis with the internal mono-standard method", Anal. Bioanal. Chem., Vol. 405, pp. 8749-8759, 2013
- [Livingston10] R. A. Livingston, M. Al-Sheikhly, A.B. Mohamed, "Numerical simulation of the PGNA signal from chlorine diffusion gradients in concrete", Appl. Radiat. Isotopes, Vol. 68, pp; 679-682, 2010
- [LNHB14] Nucléide-LARA, Bibliothèque en ligne pour la spectrométrie gamma et alpha, extrait de <http://laraweb.free.fr/>
- [Loche06] F. Loche, "Contrôle des déchets radioactifs et couplage de mesures neutron/gamma : exploitation de la capture radiative pour corriger les effets de matrice pénalisant la mesure de la masse fissile par Interrogation Neutronique Active", Thèse de doctorat en physique énergétique, Grenoble : Ecole Doctorale de Mécanique et d'Energétique, 2006, 186 p
- [Lone81] M. A. Lone, R.A. Leavitt, D.A. Harrison, "Prompt Gamma Rays from Thermal-Neutron Capture", Atom. Data Nucl. Data, Vol. 26, pp. 511-559, 1981  
<https://www-nds.iaea.org/pgaa/PGAAdatabase/lone/lone.htm>
- [Lyoussi05] A. Lyoussi. "Mesures nucléaires non-destructives dans le cycle du combustible, partie 1", Techniques de l'ingénieur, BN 3 405.
- [Ma12] J.L. Ma, C. Carasco, B. Perot, E. Mauerhofer, J. Kettler, A. Havenith, "Prompt gamma neutron activation analysis of toxic elements in radioactive waste packages", Appl. Radiat. Isotopes, Vol. 70, pp. 1261-1263, 2012
- [Marrs08] R.E. Marrs, E.B. Norman, J.T. Burke, R.A. Macri, H.A. Shugart, E. Browne and A.R. Smith, "Fission product gamma-ray line pairs sensitive to fissile material and neutron energy", Nucl. Instrum. Meth. A, vol. 592, pp. 463-471, 2008
- [Mauerhofer12] E. Mauerhofer, J. Kettler, "Neutronen-Aktivierungsanalyse mit Standardisiertem Probenbehälter zur Bestimmung des Neutronenflusses", brevet international WO/2012/010162, 2012.
- [Mauerhofer13] E. Mauerhofer, A. Havenith, C. Carasco, E. Payan, J. Kettler, J.L. Ma, B. Perot, "Quantitative Comparison Between PGNA Measurements And MCNP Calculations In View Of The Characterization Of Radioactive Wastes In Germany And France", AIP Conference Proceedings 1525, 432, 2013, doi: 10.1063/1.4802364
- [Mauerhofer14] E. Mauerhofer, A. Havenith, "The MEDINA facility for the assay of the chemotoxic inventory of radioactive waste packages", J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 302, pp. 483-488, 2014

- [Mauerhofer15] E. Mauerhofer, A. Havenith, J. Kettler, "Prompt gamma neutron activation analysis of a 200 L steel drum homogeneously filled with concrete", . Radioanal. Nucl. Chem., DOI 10.1007/s10967-016-4768-7
- [MCNP5] X-5 Monte Carlo Team, "MCNP—A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5 - Volume II: Users Guide" LA-CP-03-0245, 2003 (revised Oct. 3, 2005, 2/1/2008)
- [MCNP6] MCNP6 User's Manual - Code Version 6.1.1beta, LA-CP-14-00745, 2014
- [MCNPX240] MCNPX™ user's manual, Version 2.4.0", LA-CP-02-408, 2002
- [MCNPX260] MCNPX™ user's manual, version 2.6.0, LA-CP-07-1473, 2008
- [Meric11] I. Meric, G. A. Johansen, M. B. Holstad, J.Wang, R. P. Gardner, "Produced water characterization by prompt gamma-ray neutron activation analysis", Meas. Sci. Technol., Vol. 22, 2011
- [Mildenberger15] F. Mildenberger, E. Mauerhofer, "Thermal neutron die-away times in large samples irradiated with a pulsed 14 MeV neutron source", J. Radioanal. Nucl. Chem., DOI 10.1007/s10967-015-4178-2
- [Mildenberger16] F. Mildenberger, E. Mauerhofer, "Propt gamma neutron activation analysis of large heterogeneous samples composed of concrete and polyethylene", J. Radioanal. Nucl. Chem., DOI: 10.1007/s10967-016-4743-3
- [Molnar04] G. Molnar, "Handbook of Prompt Gamma Activation Analysis: With Neutron Beams", 2004
- [Mostafaei15] F. Mostafaei, F.E. McNeill, D.R. Chettle, M.D. Noseworthy, W.V. Prestwich, "The feasibility of in vivo quantification of bone-gadolinium in humans by prompt gamma neutron activation analysis (PGNAA) following gadolinium-based contrast-enhanced MRI", Radiat. Phys. Chem., Vol. 116, pp. 248-251, 2015
- [Naqvi03a] A.A. Naqvi, M.M. Nagadi, Khateeb-ur-Rehman, M. Maslehuddin, S. Kidwai, "Monte Carlo simulations for design of the KFUPM PGNAA facility", Radiat. Phys. Chem., Vol. 66, pp. 89-98, 2003
- [Naqvi03b] A.A. Naqvi, "A Monte Carlo comparison of PGNAA system performance using <sup>252</sup>Cf neutrons, 2.8-MeV neutrons and 14-MeV neutrons", Nucl. Instrum. Meth. A, Vol. 511, pp. 400-407, 2003
- [Naqvi04a] A.A. Naqvi, M.M. Nagadi, O. S. B. Al-Amoudi," Elemental analysis of concrete samples using an accelerator-based PGNAA setup", Nucl. Instrum. Meth. B, Vol. 225, pp. 331-338, 2004
- [Naqvi04b] A.A. Naqvi, Fazal-ur-Rehmana, M.M. Nagadi, M. Maslehuddin, Khateeb-ur-Rehman, S. Kidwai, "Verication of design calculations of a PGNAA setup using nuclear track detectors", Radiat. Meas., Vol. 38, pp. 37-41, 2004

- [Naqvi06a] A.A. Naqvi, M.M. Nagadi, O.S.B. Al-Amoudi, "Prompt gamma analysis of chlorine in concrete for corrosion study", *Appl. Radiat. Isotopes*, Vol. 64, pp. 283–289, 2006
- [Naqvi06b] A.A. Naqvi, M.S. Abdelmonem, G. Al-Misned, H. Al-Ghamdi, "New source–moderator geometry to improve performance of  $^{252}\text{Cf}$  and  $^{241}\text{Am}$ –Be source-based PGNAAs setups", *Nucl. Instrum. Meth. A*, Vol. 562, pp. 358-364, 2006
- [Naqvi10a] A.A. Naqvi, M. Maslehuddin, M.A. Garwan, M.M. Nagadi, O.S.B. Al-Amoudi, M. Raashid, Khateeb-ur-Rehman, "Effect of silica fume addition on the PGNAAs measurement of chlorine in concrete", *Appl. Radiat. Isotopes*, Vol. 68. pp. 412-417, 2010
- [Naqvi10b] A.A. Naqvi, M.A. Garwan, M. Maslehuddin, M.M. Nagadi, O.S.B. Al-Amoudi, M. Raashid, "Response of a PGNAAs setup for pozzolan-based cement concrete specimens", *Appl. Radiat. Isotopes*, Vol. 68, pp. 635-638, 2010
- [Naqvi11a] A.A. Naqvi, M.S. Al-Anezi, Zameer Kalakada, A.A. Isab, M. Raashid, Faris Ahmed Al Matouq, Khateeb-ur-Rehman, F.Z. Khiari, M.A. Garwan, O.S.B. Al-Amoudi, M. Maslehuddin, "Detection efficiency of low levels of boron and cadmium with a  $\text{LaBr}_3\text{:Ce}$  scintillation detector", *Nucl. Instrum. Meth. A*, Vol. 665, pp. 74-79, 2011
- [Naqvi11b] A.A. Naqvi, M. Maslehuddin, M.A. Garwan, M.M. Nagadi, O.S.B. Al-Amoudi, Khateeb-ur-Rehman, M. Raashid, "Estimation of minimum detectable concentration of chlorine in the blast furnace slag cement concrete", *Nucl. Instrum. Methods B*, Vol. 269, pp. 1-6, 2011
- [Naqvi12] A.A. Naqvi, Fares A. Al-Matouq, F.Z. Khiari, A.A. Isab, Khateeb-ur-Rehman, M. Raashid, "Prompt gamma tests of  $\text{LaBr}_3\text{:Ce}$  and BGO detectors for detection of hydrogen, carbon and oxygen in bulk samples", *Nucl. Instrum. Meth. A*, Vol. 684. pp. 82–87, 2012
- [Naqvi13a] A.A. Naqvi, F.A. Al-Matouq, F.Z. Khiari, M.A. Gondal, Khateeb-ur-Rehman, A.A. Isab, M. Raashid, M.A. Dastageer, "350keV accelerator based PGNAAs setup to detect nitrogen in bulk samples", *Nucl. Instrum. Meth. A*, Vol. 729, pp. 8-13, 2013
- [Naqvi13b] A.A. Naqvi, Faris A. Al-Matouq, F.Z. Khiari, A.A. Isab, M. Raashid, Khateeb-ur-Rehman, "Hydrogen, carbon and oxygen determination in proxy material samples using a  $\text{LaBr}_3\text{:Ce}$  detector", *Appl. Radiat. Isotopes*, Vol. 78, pp. 145-150, 2013
- [Naqvi13c] A.A. Naqvi, F.A. Al-Matouq, F.Z. Khiari, A.A. Isab, Khateeb-ur-Rehman, M. Raashid, "Sample dependent response of a  $\text{LaCl}_3\text{:Ce}$  detector in prompt gamma neutron activation analysis of bulk hydrocarbon samples", *Nucl. Instrum. Meth. A*, Vol. 719, pp. 39-43, 2013
- [Naqvi14] A.A. Naqvi, M. Maslehuddin, Z. Kalakada, O.S.B. Al-Amoudi, "Prompt gamma ray evaluation for chlorine analysis in blended cement concrete", *Appl. Radiat. Isotopes*, Vol. 94, pp. 8-13, 2014
- [Naqvi15a] A.A. Naqvi, F.Z. Khiari, M. Maslehuddin, M.A. Gondal, O.S. Al-Amoudi, M.S. Ukashat, A.M. Ilyas, F.A. Liadi, A.A. Isab, Khateeb-ur-Rehman, M. Raashid, M.A. Dastageer, "Pulse height tests of a large diameter fast  $\text{LaBr}_3\text{:Ce}$  scintillation detector", *Appl. Radiat. Isotopes*, Vol. 104, pp. 224–231, 2015

- [Naqvi15b] A.A. Naqvi, M. Maslehuddin, Khateeb ur-Rehman, O.S.B. Al-Amoudi, "Chlorine signal attenuation in concrete", *Appl. Radiat. Isotopes*, Vol. 105. Pp. 6-10, 2015
- [NF11] Norme Française M60-335, " Norme-Guide pour l'analyse de 15 éléments d'intérêt pour la caractérisation chimique des déchets radioactifs", 2011
- [Nicol14] T. Nicol, B. Perot, C. Carasco, E. Brackx, A. Mariani, C. Passard, E. Mauerhofer, J. Collot, "<sup>235</sup>U and <sup>239</sup>Pu characterization in radioactive waste using neutron-induced fission delayed gamma rays", *IEEE Nuclear Science Symposium* 2014.
- [Nicol15] T. Nicol, C. Carasco, B. Perot, J.L. Ma, E. Payan, E. Mauerhofer, A. Havenith, J. Collot, "Quantitative comparison between PGNA measurements and MCNPX", *J. Rad. Nucl. Chem.*, 2015, DOI: 10.1007/s10967-015-4451-4
- [Nicol16a] T. Nicol, E. Mauerhofer, B. Perot, C. Carasco, J. Collot, "Detector shielding optimization with MCNP for the MEDINA neutron activation cell", *J. Rad. Nucl. Chem.*, 2015, DOI: 10.1007/s10967-016-4816-3
- [Nicol16b] T. Nicol, B. Perot, C. Carasco, E. Brackx, A. Mariani, C. Passard, E. Mauerhofer, J. Collot, "Feasibility study of <sup>235</sup>U and <sup>239</sup>Pu characterization in radioactive waste using neutron-induced fission delayed gamma rays", *Nucl. Instrum. Meth. A*, Vol. 832, pp. 85-94, 2016
- [Nikitin10] A. Nikitin, S. Bliven, "Needs of well logging industry in new nuclear detectors", *IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record (NSS/MIC)*, 2010
- [NIST04] Coefficient d'atténuation massique gamma, extraite de <http://www.nist.gov/pml/data/xraycoef/index.cfm>
- [NNDC16] Données de décroissance gamma du National Nuclear Data Center, extrait de <http://www.nndc.bnl.gov/chart/>
- [Norman04] E.B. Norman, S.G. Prussin, R.M. Larimer, H. Shugart, E. Browne, A.R. Smith, R.J. McDonald, H. Nitsche, P. Gupta, M.I. Frank and T.B. Gosnell, "Signatures of fissile materials: high-energy  $\gamma$  rays following fission", *Nucl. Instrum. Meth. A*, vol. 521, pp. 608-610, 2004
- [OCDE02] Agence pour l'Energie Nucléaire, "Germany, Act on the Peaceful Utilisation of Atomic Energy and the Protection Against its Hazards", derniers amendements de l'acte du 22 Avril 2002 (*Bundesgesetzblatt. I*, p. 1351).
- [OCDE05] Agence pour l'Energie Nucléaire, "Radioactive Waste Management Programmes in OECD/NEA Member Countries", DOI: 10.1787/9789264012110-en, 2005
- [Oliveira97] C. Oliveira, J. Salgado, F. G. Carvallio, "Optimization of PGNA instrument design for cement raw materials using the MCNP code", *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, Vol. 216, pp. 191-198, 1997
- [ORTEC13] Gamma-Ray Spectrum Analysis and MCA Emulator for Microsoft® Windows® 7 and XP® Professional SP3, User Manual

- [Parsons11] A. Parsons, J.B odnarik, L. Evans, S. Floyd, L. Lim, T. McClanahan, M. Namkung, S. Nowicki, J. Schweitzer, R. Starr, J. Trombka, "Active neutron and gamma-ray instrumentation for in situ planetary science applications", Nucl. Instrum. Meth. A, Vol. 652, pp. 674-679, 2011
- [Paul00] R.L. Paul, R.M. Lindstrom, "Prompt gamma-ray activation analysis: Fundamental and applications", J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 243, pp. 181-189, 2000
- [Pehl79] R.H. Pehl, N.W. Madden, J.H. Elliott, T.W. Raudorf, R.C. Trammell, L.S. Darken, "Radiation damage resistance of reverse electrode Ge coaxial detectors", IEEE Trans. Nucl. Sci., Vol. NS-26, 1979
- [Perot96] B. Perot, "Optimisation des méthodes de mesure neutronique active pour les déchets radioactifs et contribution à la modélisation d'un dispositif industriel", Thèse de doctorat en physique, Grenoble : Ecole Doctorale de Physique, 1996, 277 p
- [Perot98] B. Perot, C. Passard, A. Mariani, C. Heulin and J.L. Ferraguto, "Monte Carlo calculations applied to alpha bearing waste characterization (Promethee active neutron measurement devise)", Waste Management, Tucson Arizona, 1998
- [Perot04] B. Perot, J.L. Artaud, C. Passard and A.C. Raoux, "Experimental qualification with a scale one mock-up of the 'measurement and sorting unit for bituminized waste drums", Proceedings of ICEM 03, 2004
- [Perot07] B. Perot, C. Carasco, S. Bernard, A. Mariani, J.-L. Szabo, E. Mercier, G. Sannie, G. Viesti, G. Nebbia, S. Pesente, et al., "Development of the EURITRACK tagged neutron inspection system", Nucl. Instrum. Meth. B, Vol. 261, pp. 295-298, 2007
- [Perot09] B. Perot, C. Carasco, R. Vogler, E. Cusset, J.L. Ma, P. Pras, M. Gmar, G. Sannie, S. Normand, "Acquisition of neutron-induced gamma signatures of chemical agents", International Atomic Energy Agency (IAEA), "Acquisition of neutron-induced gamma signatures of chemical agents" (INIS-XA--09N0647), 2009
- [Perot12] B. Perot, C. Carasco, M. Toure, W. El Kanawati, C. Eleon, "Elemental Characterization of LL-MA Radioactive Waste Packages with the Associated Particle Technique", IEEE Trans. Nucl. Sci., Vol. 59, No. 4, pp. 1390-1396, 2012
- [Perry02] D.L. Perry, R.B. Firestone, G.L. Molnar, Zs. Revay, Zs. Kasztovszky, R.C. Gatti, P. Wilde, "Neutron-induced prompt gamma activation analysis (PGAA) of metals and non-metals in ocean floor geothermal vent-generated samples", . Anal. At. Spectrom., Vol. 17, pp. 32-37, 2002
- [Raoux00] A.C. Raoux, A. Lyoussi, C. Passard, J. Romeyer-Dherbey, C. Denis, J. Loridaon, J. Misraki, P. Chany, "Nondestructive radioactive waste assay by using fast and thermal neutron interrogation", Proceedings of the international conference Safewaste, Montpellier (France), 2000

- [Raoux03] A.C. Raoux, A. Lyoussi, C. Passard, C. Denis, J. Loridaon, J. Misraki, P. Chany, "Transuranic waste assay by neutron interrogation and online prompt and delayed neutron measurement", Nucl. Instrum. Meth. B, Vol. 207, pp. 186-194, 2003
- [Reedy02] R.C. Reedy, S.C. Frankle, "Prompt Gamma Rays from Radiative Capture of Thermal Neutrons by Elements from Hydrogen through Zinc", Atom. Data Nucl. Data, Vol. 80, pp. 1-34, 2002  
<https://www-nds.iaea.org/pgaa/PGAAdatabase/LANL/CD-ROM/Frankle/index.html>
- [Rennhofer11] H. Rennhofer, J.-M. Crochemore, E. Roesgen, B. Pedersen, "Detection of SNM by delayed gamma rays from induced fission", Nucl. Instrum. Meth. A, Vol. 652, pp. 140-142, 2011
- [Rinard01] P.M. Rinard, "Application Guide to Shufflers", rapport Laboratoire Los Alamos, LA-13819-MS, 2001
- [Rohée15] E. Rohée, R. Coulon, F. Carrel, S. Normand, C. Jammes, T. Dautremer, E. Barat, T. Montagu, "Qualitative and quantitative validation of the SINBAD code on complex HPGe gamma-ray spectra", proceedings of ANIMMA 2015
- [Sari12] A. Sari, F. Carrel, M. Gmar, F. Lainé, A. Lyoussi, S. Normand, "Detection of Actinides With an Electron Accelerator by Active Photoneutron Interrogation Measurements", IEEE Trans. Nucl. Sci., Vol. 59, 2012
- [Shue96] S.L. Shue, R.E. Faw, J.K. Shultis, "Fast Neutron Thermalization and Capture Gamma-ray Generation in Soils", Proceedings 9<sup>th</sup> Annual conference on hazardous waste remediation, Bozeman, Montana (United States), 8-10 Jun 1994
- [Shultis01] J. K. Shultis, F. Khana, B. Letellier, R. E. Fawa, Determining soil contamination profiles from intensities of capture-gamma rays using above-surface neutron sources", Appl. Radiat. Isotopes, Vol. 54, pp. 565-583, 2001
- [Slaughter05] D.R. Slaughter, M.R. Accatino, A. Bernstein, J.A. Church, M.A. Descalle, T.B. Gosnell, J.M. Hall, A. Loshak, D.R. Manatt, G.J. Mauger, T.L. Moore, E.B. Norman, B.A. Pohl, J.A. Pruet, D.C. Petersen, R.S. Walling, D.L. Weirup, S.G. Prussin and M. McDowell, "Preliminary results utilizing high-energy fission product  $\gamma$ -rays to detect fissionable material in cargo", Nucl. Instrum. Meth. B, vol. 241, pp. 777-781, 2005
- [Slaughter07] D.R. Slaughter, M.R. Accatino, A. Bernstein, P. Bilotto, J.A. Church, M.A. Descalle, J.M. Hall, D.R. Manatt, G.J. Mauger, T.L. Moore, E.B. Norman, D.C. Petersen, J.A. Pruet, S.G. Prussin, "The nuclear car wash: A system to detect nuclear weapons in commercial cargo shipments", Nucl. Instrum. Meth. A, Vol. 579, pp. 349-352, 2007
- [SODERN] SODERN GENIE35 neutron generator, Extrait de [http://www.sodern.com/sites/en/ref/Neutron-generator\\_79.html](http://www.sodern.com/sites/en/ref/Neutron-generator_79.html)
- [Sowerby09] B.D. Sowerby, "Nuclear techniques for the on-line bulk analysis of carbon in coal-fired power stations", Appl. Radiat. Isotopes, Vol. 67, pp. 1638-1643, 2009

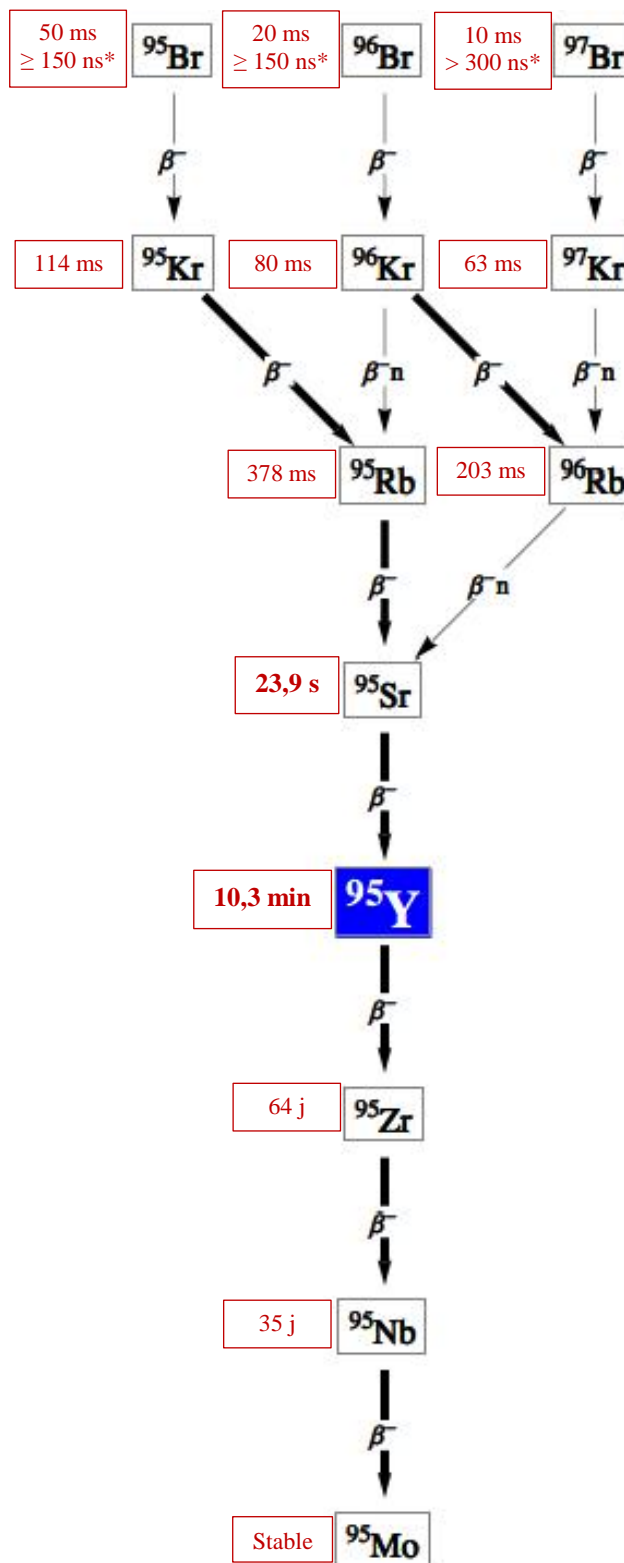


- [Steinnes71] E. Steinnes, in A. O. Brunfelt and E. Steinnes (Eds.), "Activation Analysis in Geochemistry and Cosmochemistry, Universitetsforlaget", Oslo, pp. 113-128, 1971.
- [Stella11] S. Stella, "Design of a Prompt Gamma Neutron Activation Analyses (PGNAA) system for Boron Neutron Capture Therapy (BNCT) using Monte Carlo code", PhD thesis, University of Pavia, Italy, 2011.
- [Stevenson11] J. Stevenson, T. Gozani, M. Elsalim, C. Condrón and C. Brown, "Linac based photofission inspection system employing novel detection concepts", Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A, vol. 652, pp. 124-128, 2011.
- [SWX215] Shieldwerx™, lithium polyethylene neutron shielding, retrieved from <http://www.shieldwerx.com/assets/swx-215.pdf>
- [Trofimczyk09] K. Trofimczyk, S. Saraswatibhatla, C. Smith, "Spectrometric Nuclear Logging as a Tool for real-time, downhole assay – Case Studies using SIROLOG PGNAA", 11th SAGA Biennial Technical Meeting and Exhibition Swaziland, 16-18 September 2009
- [Twomey07] T. R. Twomey, A. J. Caffrey, D. L. Chichester, "Nondestructive Identification of Chemical Warfare Agents and Explosives by Neutron Generator-Driven PGNAA", United States 2007
- [Upp01] D.L. Upp, R.M. Keyser, D.A. Gedcke, T.R. Twomey, R.D. Bingham, "An innovative method for dead time correction in nuclear spectroscopy", J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 248, pp. 377-383, 2001
- [Vourvopoulos01] G. Vourvopoulos, P. C. Womble, "Pulsed Fast/Thermal Neutron Analysis: A Technique for Explosives Detection", Talanta, Vol. 54, pp. 459-468, 2001
- [Weiss86] S.J. Weiss, associate member, IEEE, E.M. Gartner, "New Control Strategies for Raw Mix Preparation", T. Ind. Appl., Vol. IA-22, 1986
- [Wen13] X. Wen, J.G.Kavouras, D.R.Nakazawa, H. Yang, "Simulation and measurement of delayed  $\gamma$ -rays after photon-induced fission", Nucl. Instrum. Meth. A, Vol. 729, pp. 781-787, 2013
- [WenBao14] J. WenBao, H. DaQian, C. Can, Z. HaoJia, S. Qing, "Optimization of PGNAA set-up for the elements detection in aqueous solution", Sci. China, Vol. 57, pp 625-629, 2014
- [Westphal77] G.P. Westphal, "Loss-free counting – a concept for real-time compensation of dead-time and pile-up losses in nuclear pulse spectroscopy", Nucl. Instrum. Meth., Vol. 146, pp. 605-606, 1977
- [Westphal79] G.P. Westphal, "On the performance of loss-free counting – a method for real-time compensation of dead-time and pile-up losses in nuclear pulse spectroscopy", Nucl. Instrum. Meth., Vol. 163, pp. 189-196, 1979
- [Westphal82] G.P. Westphal, "Real-time correction of counting losses in nuclear pulse spectroscopy", J. Radioanal. Chem., Vol. 70, pp. 387-410, 1982
- [Westphal85] G.P. Westphal, "Instrumental correction of counting losses in nuclear pulse spectroscopy", Nucl. Instrum. Meth. B, Vol. 10/11, pp. 1047-1050, 1985

- [Westphal07] G.P. Westphal, H. Lemmel, "The perfection of loss-free counting", J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 276, pp. 601-607, 2008
- [Womble05] P.C. Womble, J. Paschal, R. Moore, "Cement analysis using d + D neutrons", Nucl. Instrum. Meth. B, Vol. 241, pp. 765-769, 2005
- [XUNDL16] Experimental Unevaluated Nuclear Data List (XUNDL)  
<http://www.nndc.bnl.gov/ensdf/ensdf/xundl.jsp>
- [Yee09] R.M. Yee, T.J. Shaw, T. Gozani, "Thermal neutron die-away studies in a 14 MeV neutron-based active interrogation system", IEEE Trans. Nucl. Sci., Vol. 56, 2009
- [Yonezawa96] C. Yonezawa, H. Matsue, M. Hoshi, "Multi-element analysis of environmental samples by cold and thermal guided neutron induced prompt gamma-ray measurement", J. Radioanal. Nucl. Chem., Vol. 215, pp. 81-85, 1997
- [Yongsheng15] L. Yongsheng, J. Wenbao, H. Daqian, S. Qing, C. Can, Z. Haojia, H. Wenyu, H. Yanquan, C. Da, "A new Am-Be PGNAO setup for element determination in aqueous solution", Appl. Radiat. Isotopes, Vol. 95, pp. 233-238, 2015
- [Zhang15] Z. Zhang, Y. Chong, X. Chen, C. Jin, L. Yang, T. Liu, "PGNAO system preliminary design and measurement of In-Hospital Neutron Irradiator for boron concentration measurement", Appl. Radiat. Isotopes, Vol. 106, pp. 161-165, 2015



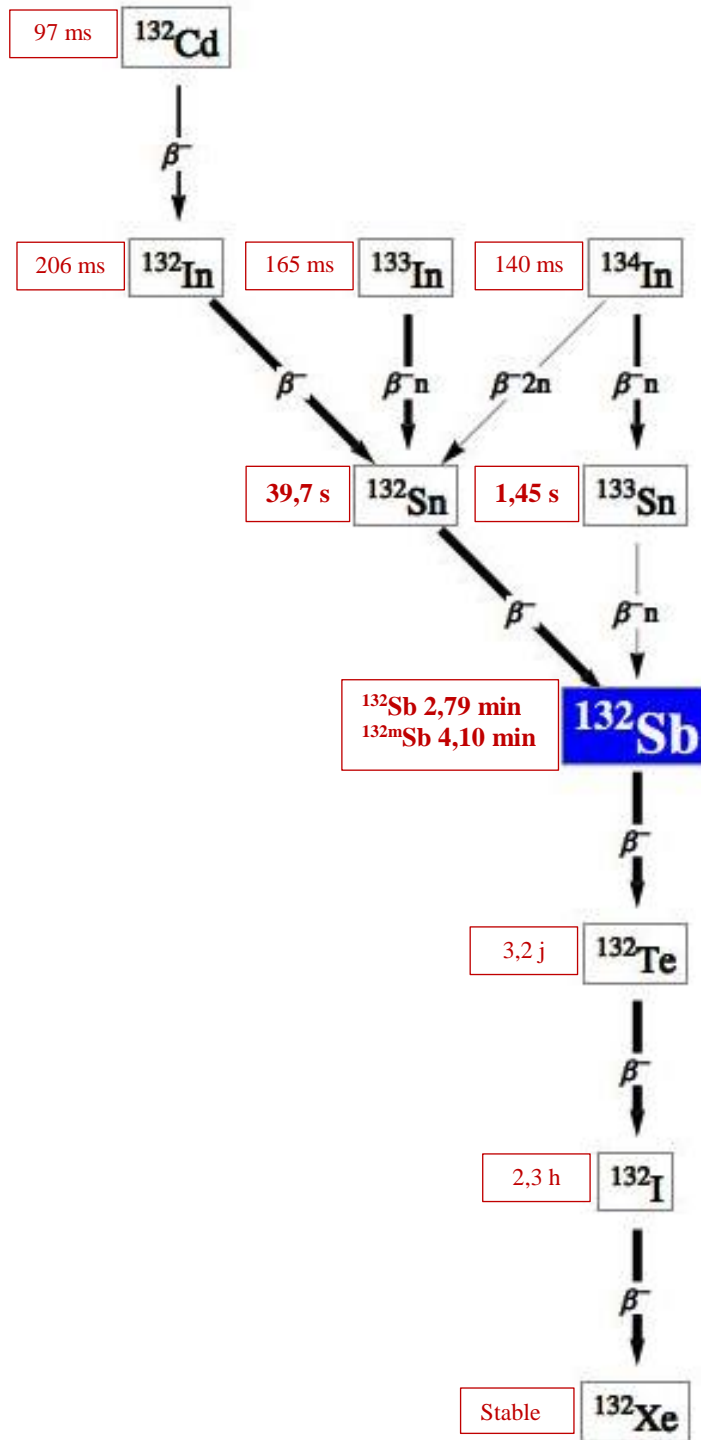
## Annexe 1 : Chaines de décroissance des isotopes émetteurs de rayonnements gamma retardés de fission



Generated by *Mathematica*  
© 2007 Theodore Gray

(<http://periodictable.com/index.html>)

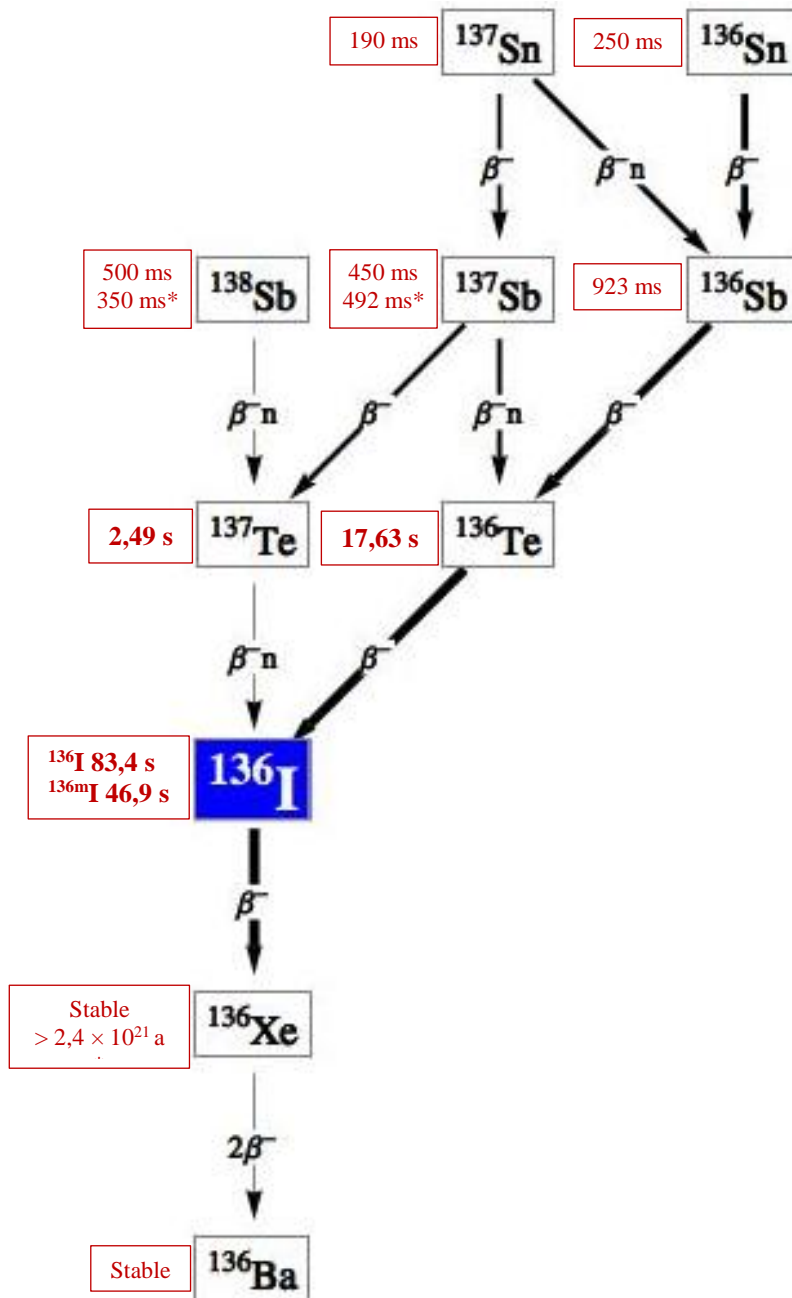
(\*temps de demi vie donné par *National Nuclear Data Center* si différent : <http://www.nndc.bnl.gov/chart/chartNuc.jsp>)



Generated by *Mathematica*  
© 2007 Theodore Gray

(<http://periodictable.com/index.html>)

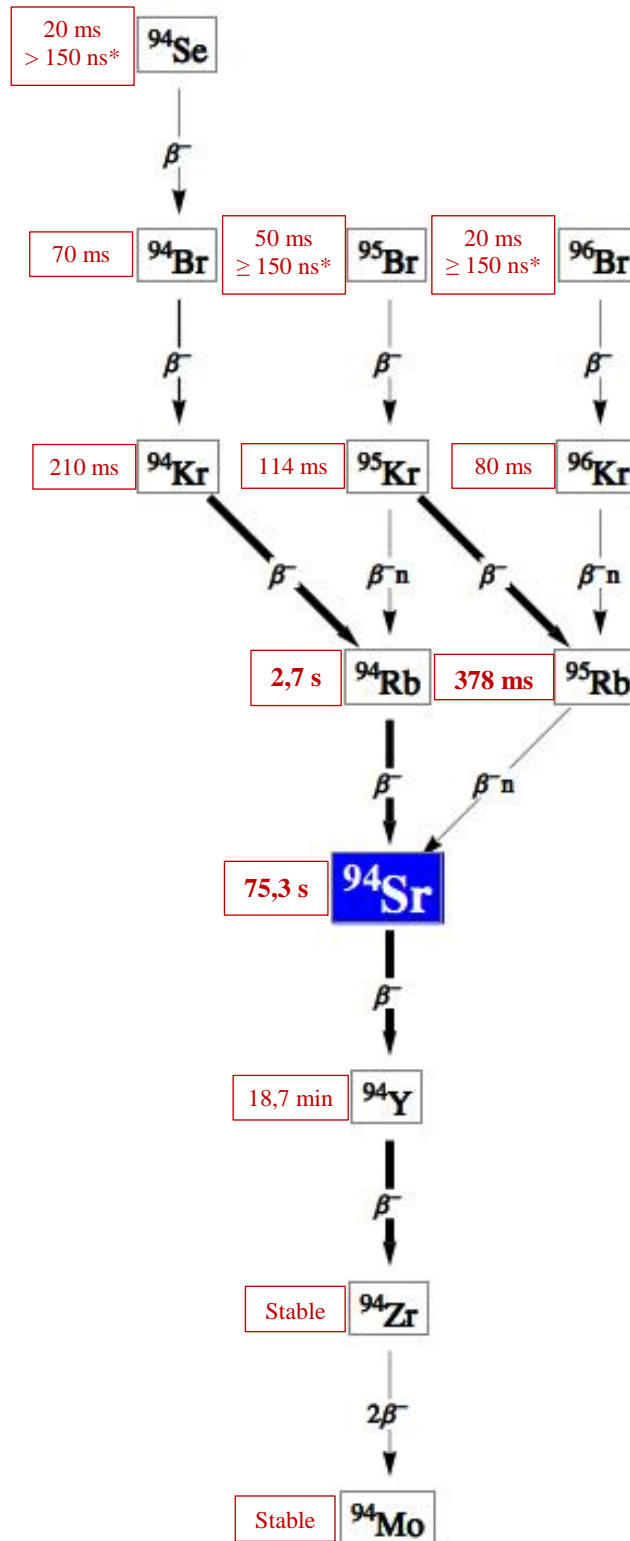
(\*temps de demi vie donné par *National Nuclear Data Center* si différent : <http://www.nndc.bnl.gov/chart/chartNuc.jsp>)



Generated by *Mathematica*  
© 2007 Theodore Gray

(<http://periodictable.com/index.html>)

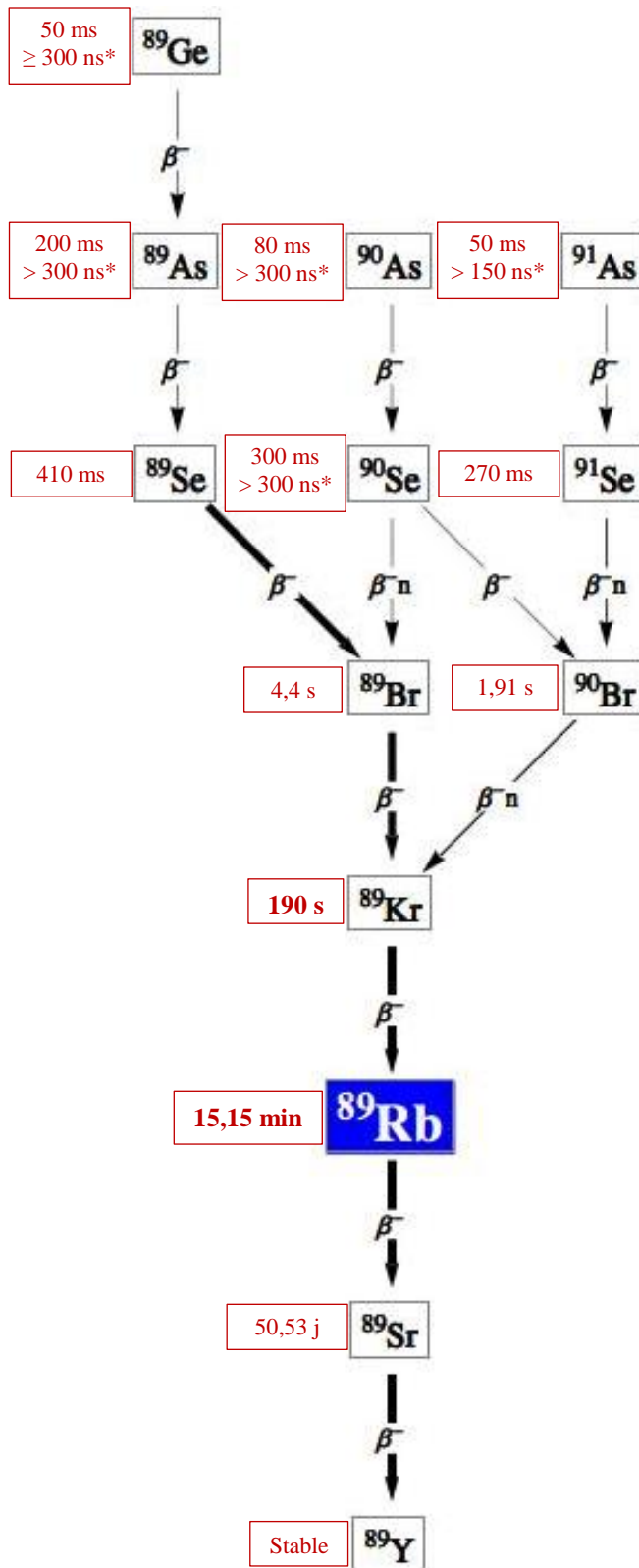
(\*temps de demi vie donné par *National Nuclear Data Center* si différent : <http://www.nndc.bnl.gov/chart/chartNuc.jsp>)



Generated by *Mathematica*  
© 2007 Theodore Gray

(<http://periodictable.com/index.html>)

(\*temps de demi vie donné par *National Nuclear Data Center* si différent : <http://www.nndc.bnl.gov/chart/chartNuc.jsp>)



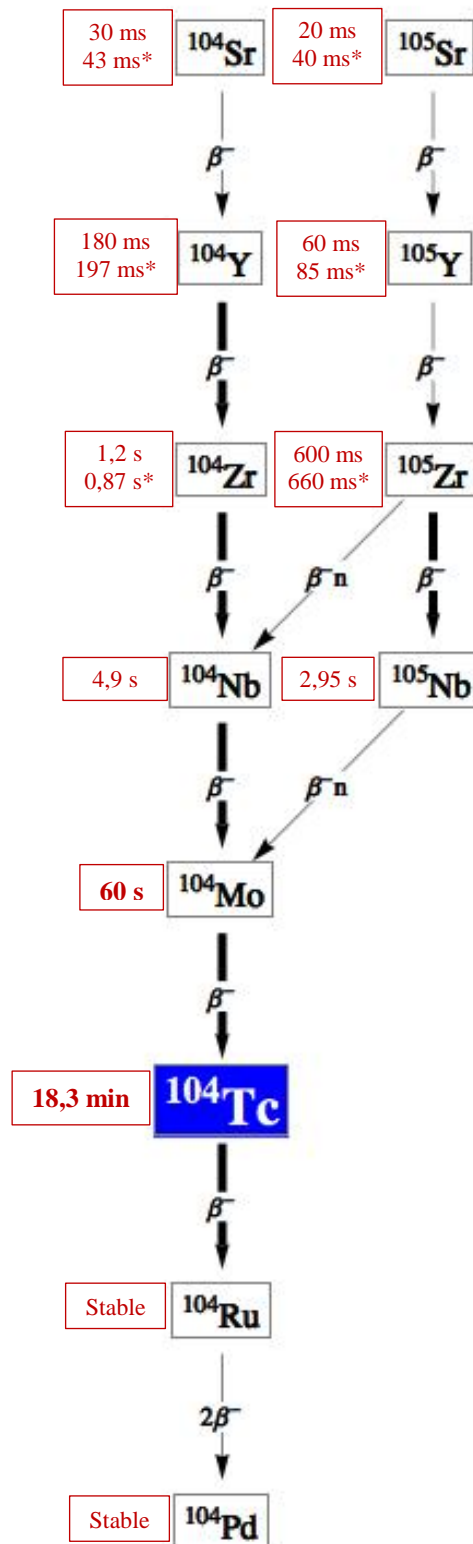
Generated by *Mathematica*

© 2007 Theodore Gray

(<http://periodictable.com/index.html>)

(\*temps de demi vie donné par *National Nuclear Data Center* si différent : <http://www.nndc.bnl.gov/chart/chartNuc.jsp>)

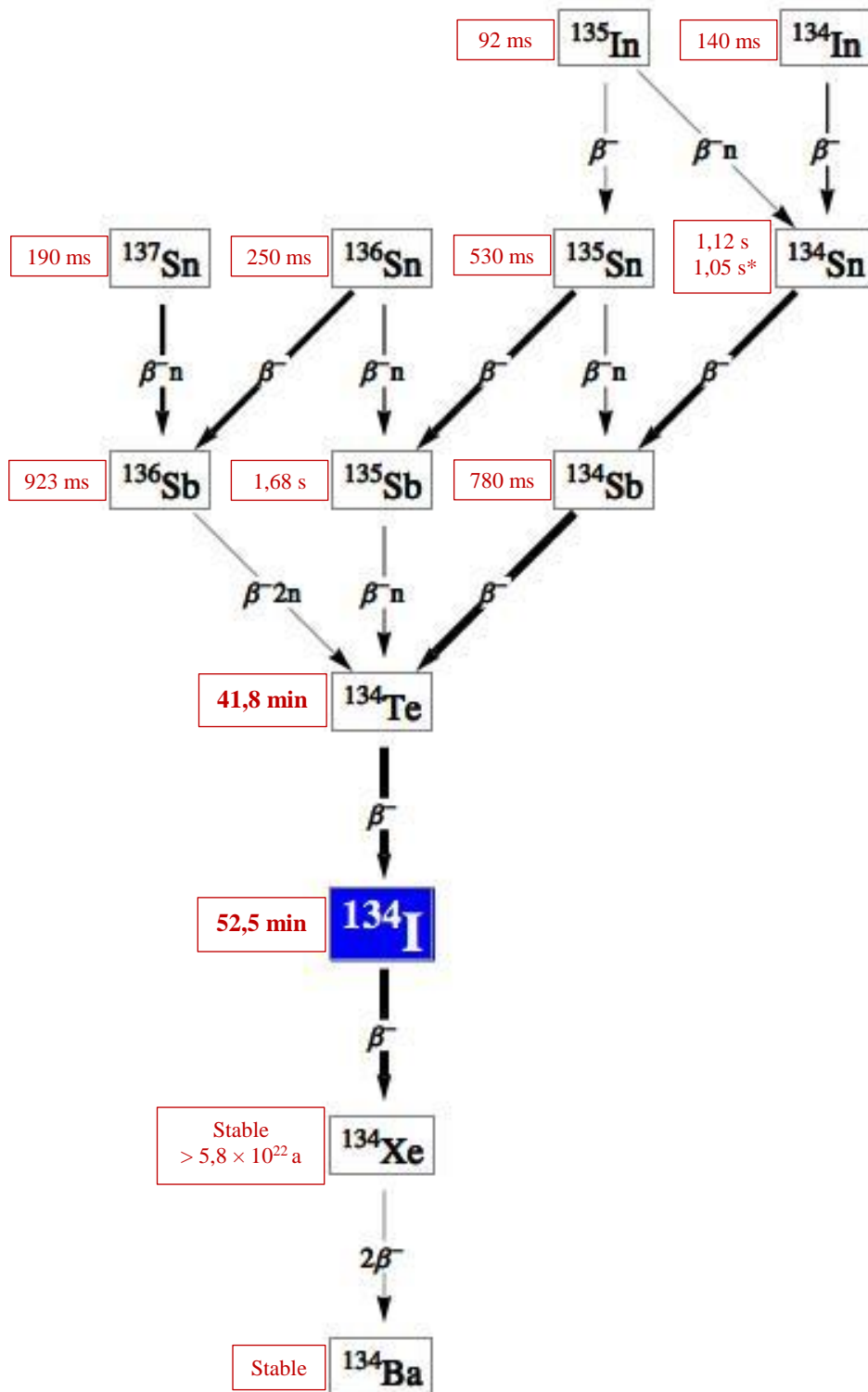




Generated by Mathematica  
© 2007 Theodore Gray

(<http://periodictable.com/index.html>)

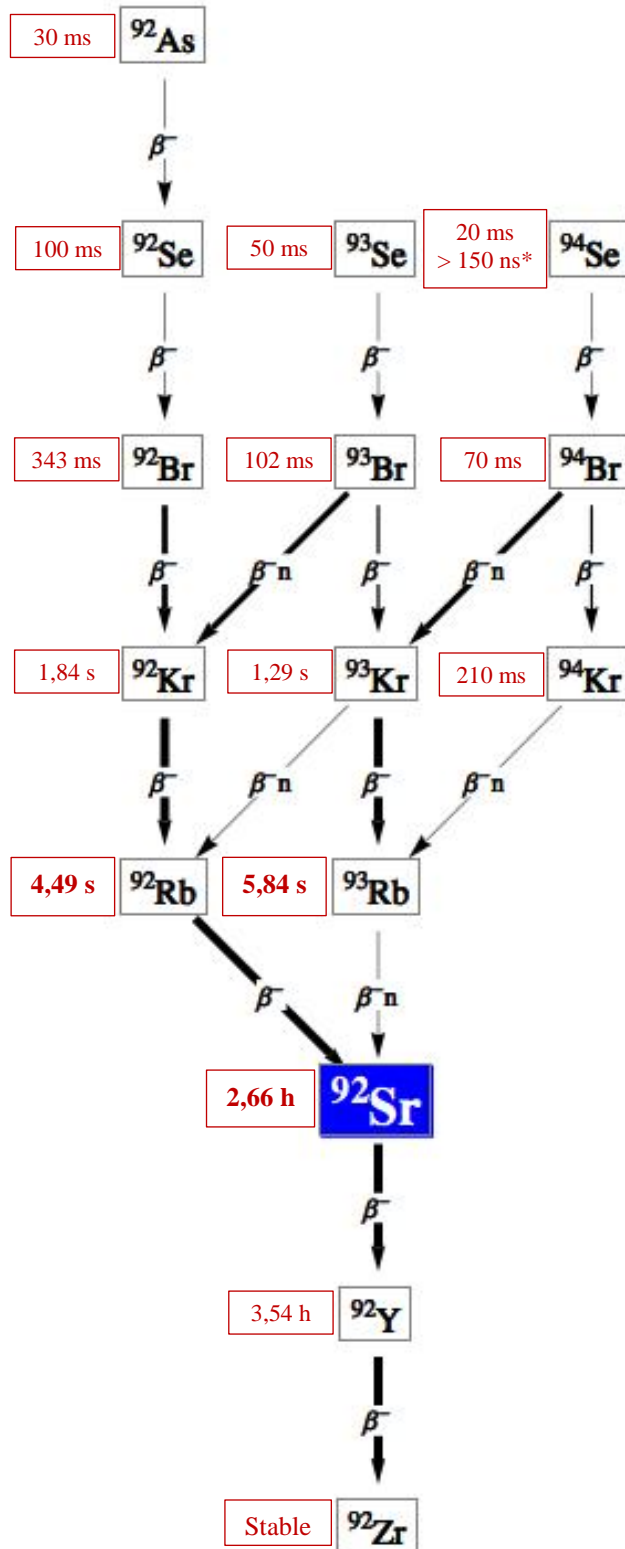
(\*temps de demi vie donné par National Nuclear Data Center si différent : <http://www.nndc.bnl.gov/chart/chartNuc.jsp>)



Generated by Mathematica  
© 2007 Theodore Gray

(<http://periodictable.com/index.html>)

(\*temps de demi vie donné par National Nuclear Data Center si différent : <http://www.nndc.bnl.gov/chart/chartNuc.jsp>)



Generated by *Mathematica*  
© 2007 Theodore Gray

(<http://periodictable.com/index.html>)

(\* temps de demi vie donné par National Nuclear Data Center si différent : <http://www.nndc.bnl.gov/chart/chartNuc.jsp>)

## Annexe 2 : Calculs des produits de fission émetteurs des rayonnements gamma retardés

### 2.1. Calculs d'évolution pendant l'irradiation

Les évolutions du nombre de produit de fission émetteur gamma (désigné comme noyau fils),  $N_f$ , et du précurseur direct (désigné comme noyau père),  $N_p$ , au cours d'une irradiation continue, s'écrivent :

$$\begin{aligned}\frac{dN_p}{dt} &= R_f \times F_c^p - \lambda_p \times N_p \\ \frac{dN_f}{dt} &= R_f \times F_i^f + \lambda_p \times N_p - \lambda_f \times N_f\end{aligned}$$

Avec

$R_f$ : taux de fission moyen ( $s^{-1}$ ), considéré comme constant pendant l'irradiation pulsée (car la fréquence et la durée des impulsions sont très petites par rapport à  $1/\lambda_p$  et  $1/\lambda_f$ )

$\lambda_p$ : constante de décroissance radioactive ( $s^{-1}$ ) de l'isotope précurseur (isotope père) à l'émetteur gamma d'intérêt

$\lambda_f$ : constante de décroissance radioactive ( $s^{-1}$ ) de l'isotope émetteur gamma d'intérêt (isotope fils)

$F_c^p$ : rendement de fission cumulé de l'isotope père (sans dimensions)

$F_i^f$ : rendement de fission indépendant de l'isotope fils (sans dimensions)

La solution de l'équation différentielle du noyau père est :

$$N_p(t) = \frac{R_f \times F_c^p}{\lambda_p} \times (1 - e^{-\lambda_p \times t}) \quad (22)$$

L'équation différentielle du noyau fils devient donc :

$$\frac{dN_f}{dt} + \lambda_f \times N_f = R_f \times [F_i^f + F_c^p \times (1 - e^{-\lambda_p \times t})]$$

En posant :

$$F_c^f = F_i^f + F_c^p$$

Alors :

$$\frac{dN_f}{dt} + \lambda_f \times N_f = R_f \times [F_c^f - F_c^p \times e^{-\lambda_p \times t}]$$

La solution de l'équation différentielle du nombre de noyau fils est :

$$N_f(t) = \frac{R_f \times F_c^f}{\lambda_f} \times (1 - e^{-\lambda_f \times t}) + \frac{R_f \times F_c^p}{\lambda_f - \lambda_p} \times (e^{-\lambda_f \times t} - e^{-\lambda_p \times t}) \quad (I)$$

Le nombre de décroissances pendant l'irradiation d'une durée totale  $T_i$  s'exprime sous la forme :

$$\int_0^{T_i} \lambda_f \times N_f(t) dt = R_f \times \left[ F_c^f \times \left( T_i + \frac{e^{-\lambda_f \times T_i} - 1}{\lambda_f} \right) + F_c^p \times \frac{\lambda_f}{\lambda_f - \lambda_p} \times \left( \frac{e^{-\lambda_p \times T_i} - 1}{\lambda_p} - \frac{e^{-\lambda_f \times T_i} - 1}{\lambda_f} \right) \right]$$

Le nombre de rayonnements gamma retardés émis pour une fission s'exprime donc :

$$N_\gamma = I_\gamma \times \frac{1}{T_i} \times \left[ F_c^f \times \left( T_i + \frac{e^{-\lambda_f \times T_i} - 1}{\lambda_f} \right) + F_c^p \times \frac{\lambda_f}{\lambda_f - \lambda_p} \times \left( \frac{e^{-\lambda_p \times T_i} - 1}{\lambda_p} - \frac{e^{-\lambda_f \times T_i} - 1}{\lambda_f} \right) \right]$$

Avec

$I_\gamma$  : rapport d'embranchement (sans dimension) de la raie gamma émise suite à la désintégration du produit de fission d'intérêt

Comme expliqué au paragraphe II.2 du chapitre III et comme on peut le voir dans l'équation ci-dessus, plus le temps d'irradiation est long, plus le second terme devient négligeable par rapport au premier car la constante de temps  $1/\lambda_p$  devient petite par rapport à  $T_i$  (7200 s), l'équation se simplifiant alors comme suit :

$$N_\gamma = I_\gamma \times F_c^f \left[ \frac{1}{T_i \times \lambda_f} \times (e^{-\lambda_f \times T_i} - 1) + 1 \right]$$

En outre, comme l'acquisition des spectres de rayonnement gamma retardé de fission n'est réalisée que pendant une fraction de temps  $t_c$  de chaque cycle de l'irradiation ( $t_i + t_d + t_c$ ), l'émission se produisant pendant ces fenêtres de mesure peut alors s'exprimer par :

$$N_\gamma = I_\gamma \times F_c^f \left[ \frac{1}{T_i \times \lambda_f} \times (e^{-\lambda_f \times T_i} - 1) + 1 \right] \times \frac{t_c}{t_i + t_d + t_c}$$

## 2.2. Calculs d'évolution après l'irradiation

D'après les équations (22) et (I) précédentes, les nombres de noyaux pères et de noyaux fils produits à la fin de la période d'irradiation s'expriment par :

$$N_p(T_i) = \frac{R_f \times F_c^p}{\lambda_p} \times (1 - e^{-\lambda_p \times T_i})$$

$$N_f(T_i) = \frac{R_f \times F_c^f}{\lambda_f} \times (1 - e^{-\lambda_f \times T_i}) + \frac{R_f \times F_c^p}{\lambda_f - \lambda_p} \times (e^{-\lambda_f \times T_i} - e^{-\lambda_p \times T_i})$$

Les évolutions des noyaux pères et fils après irradiation sont données par :

$$\frac{dN_p}{dt} = -\lambda_p \times N_p$$

$$\frac{dN_f}{dt} = \lambda_p \times N_p - \lambda_f \times N_f$$

Les solutions de ces équations différentielles sont :

$$N_p(t) = N_p(T_i) \times e^{-\lambda_p \times t}$$

$$N_f(t) = N_f(T_i) \times e^{-\lambda_f \times t} + N_p(T_i) \times \frac{\lambda_p}{\lambda_f - \lambda_p} \times (e^{-\lambda_p \times t} - e^{-\lambda_f \times t})$$

Le nombre de décroissances pendant la fenêtre de comptage post irradiation ( $T_c$ ), après le délai de refroidissement ou de transfert des échantillons ( $T_d$ ), est alors donné par :

$$\int_{T_d}^{T_d+T_c} \lambda_f \times N_f(t) dt$$

$$= N_f(T_i) \times (e^{-\lambda_f \times T_d} - e^{-\lambda_f \times (T_d+T_c)}) + N_p(T_i) \times \frac{\lambda_p}{\lambda_f - \lambda_p}$$

$$\times \left[ \frac{\lambda_f}{\lambda_p} \times (e^{-\lambda_p \times T_d} - e^{-\lambda_p \times (T_d+T_c)}) - (e^{-\lambda_f \times T_d} - e^{-\lambda_f \times (T_d+T_c)}) \right]$$

Le nombre de rayonnements gamma retardés émis pendant la mesure après irradiation est donc :

$$N_\gamma = I_\gamma \times R_f \times \left\{ \left[ \frac{F_c^f}{\lambda_f} \times (1 - e^{-\lambda_f \times T_i}) + \frac{F_c^p}{\lambda_f - \lambda_p} \times (e^{-\lambda_f \times T_i} - e^{-\lambda_p \times T_i}) \right] \right.$$

$$\times (e^{-\lambda_f \times T_d} - e^{-\lambda_f \times (T_d+T_c)}) + \frac{F_c^p}{\lambda_p} \times (1 - e^{-\lambda_p \times T_i}) \times \frac{\lambda_p}{\lambda_f - \lambda_p}$$

$$\left. \times \left[ \frac{\lambda_f}{\lambda_p} \times (e^{-\lambda_p \times T_d} - e^{-\lambda_p \times (T_d+T_c)}) - (e^{-\lambda_f \times T_d} - e^{-\lambda_f \times (T_d+T_c)}) \right] \right\}$$

$$N_\gamma = I_\gamma \times R_f \times \left\{ \frac{F_i^f}{\lambda_f} \times (1 - e^{-\lambda_f \times T_i}) \times (e^{-\lambda_f \times T_i} - e^{-\lambda_p \times T_i}) + \frac{F_c^p}{\lambda_f - \lambda_p} \right.$$

$$\times \left[ \frac{\lambda_p}{\lambda_f} \times (1 - e^{-\lambda_f \times T_i}) \times (e^{-\lambda_f \times T_d} - e^{-\lambda_f \times (T_d+T_c)}) - \frac{\lambda_f}{\lambda_p} \times (1 - e^{-\lambda_p \times T_i}) \right.$$

$$\left. \left. \times (e^{-\lambda_p \times T_d} - e^{-\lambda_p \times (T_d+T_c)}) \right] \right\}$$



## Annexe 3 : Méthode analytique de détermination des limites de détection des rayonnements gamma retardés de fission

### 3.1. Estimation du flux de neutrons utiles dans le fût de déchets

Le principe de la méthode consiste à estimer le flux de neutrons dans la matrice d'un fût de 200 L en exploitant les raies gamma de captures radiatives induites sur l'enveloppe métallique du colis [Mauerhofer12, Havenith15]. Compte tenu du chronogramme considéré (temps d'impulsion  $t_i$  de 10 ms, temps d'attente  $t_d$  de 10 ms, temps de répétition  $T_{rep}$  de 50 ms) et du temps de vie des neutrons thermiques dans la cellule MEDINA (2,3 ms en présence d'un fût béton [Mildenberger15]), le colis de déchets est soumis à un flux de neutrons thermiques pendant les impulsions neutroniques  $t_i$  ainsi que pendant les périodes d'attentes  $t_d$  avant la mesure des rayonnements gamma retardés  $t_c$ . L'allure du flux de neutrons thermiques pendant et à la suite d'une impulsion du générateur de neutrons est illustrée en Figure 83.

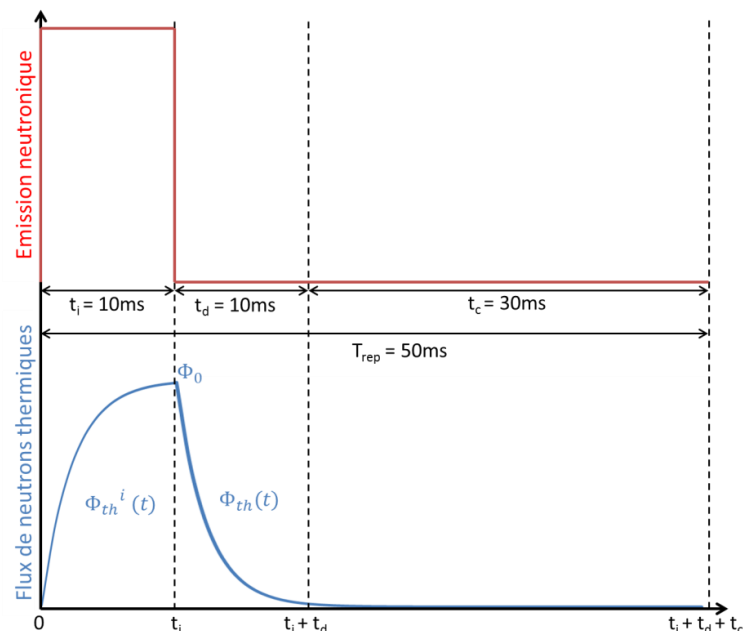


Figure 83. Allure du flux de neutrons thermiques, pendant ( $\Phi_{th}^i$ ) et après ( $\Phi_{th}$ ) une impulsion du générateur.

L'allure du flux de neutrons en Figure 83 n'est représentative que des neutrons thermiques. Toutefois, une composante épithermique existe également dans MEDINA. Cette dernière a été caractérisée par mesure du rayonnement gamma retardé d'activation neutronique induit par une irradiation pulsée (impulsions de 50  $\mu$ s, temps de répétition de 1 ms) d'une feuille d'or placée au centre d'un fût de 200 L vide. La capture neutronique de l'isotope  $^{197}\text{Au}$  produit l'isotope radioactif  $^{198}\text{Au}$  ( $T_{1/2} = 2,695$  j) qui émet, à la suite de sa décroissance  $\beta^-$ , un rayonnement gamma à 411,8 keV. Pendant l'irradiation, la feuille d'or (0,1 mm d'épaisseur) a dans un premier temps été placée entre deux plaques de cadmium de 1 mm d'épaisseur absorbant les neutrons d'énergie inférieure à environ 0,5 eV (coupure du cadmium, voir section efficace en Figure 84). La feuille d'or n'a donc été activée que par des neutrons épithermiques.



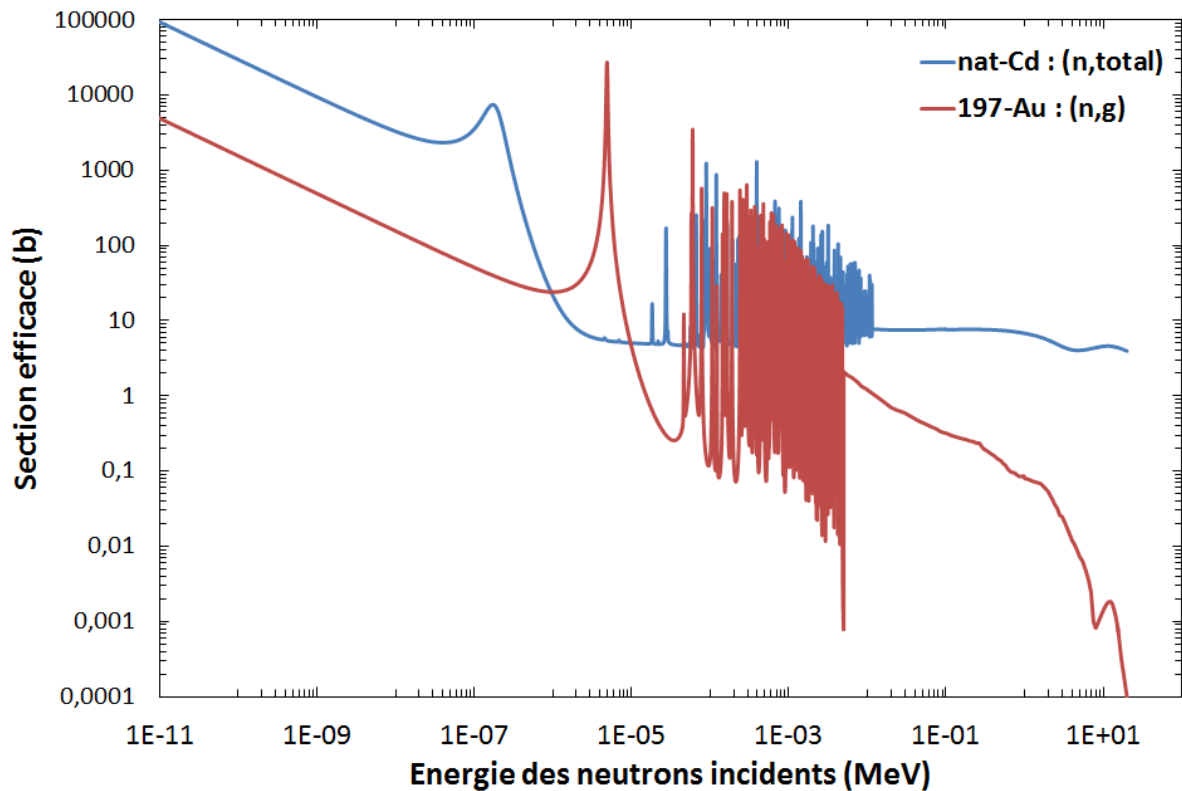


Figure 84. Section efficace d'absorption totale des neutrons du cadmium naturel (en bleu) et section efficace de capture neutronique de l'isotope  $^{197}\text{Au}$  (en rouge).

Connaissant l'intégrale de résonance de la réaction  $^{197}\text{Au}(n,\gamma)$  [JEA16] (voir définition dans la suite du paragraphe), l'activité mesurée permet alors d'estimer le flux de neutrons épithermiques auquel a été soumis la feuille d'or. Ensuite, une seconde mesure sans écran de cadmium permet d'estimer l'activité induite par l'ensemble des neutrons thermiques et épithermiques. La relation entre le taux de réaction et les flux de neutrons thermiques et épithermiques, voir référence [Steinnes71], permet de déduire la composante thermique. Les détails de la méthode et les résultats sont exposés en référence [Havenith15].

Du fait de la thermalisation rapide des neutrons, la composante épithermique n'intervient que pendant les impulsions et quelques centaines de microsecondes après chacune d'elles. Dans le cas du chronogramme employé ici (impulsions de 10 ms et temps de répétition de 50 ms) la composante épithermique contribue à l'activation tout au long de la durée des impulsions neutroniques ( $t_i = 10$  ms) mais elle est négligeable après les impulsions (pendant la fenêtre  $t_d = 10$  ms). Seul le flux thermique  $\Phi_{th}$  sera donc considéré après les impulsions de neutrons, alors que la composante épithermique sera intégrée avec le flux thermique  $\Phi_{th}^i$  dans un terme appelé « flux thermique équivalent »,  $\Phi_{th\,eq}^i$ , pendant les impulsions, comme détaillé plus loin.

La mesure du rayonnement gamma prompt de capture radiative produit dans le fer constituant le fût donne une bonne approximation du flux de neutrons thermiques moyen dans la matrice béton du colis après une impulsion du générateur [Havenith15, Mauerhofer15, Mildemberger16]. Cette émission est mesurée pendant le temps d'attente ( $t_d$ ) précédant la mesure des rayonnements gamma retardés ( $t_c$ ).

L'expression du signal prompt mesuré est alors donnée par

$$\frac{S_{E_\gamma}(Fe)}{n \times t_d} = N(Fe) \times \sigma_{E_\gamma}(Fe) \times \varepsilon_{E_\gamma} \times \bar{\Phi}_{th}$$

avec

$S_{E_\gamma}(Fe)$  : l'aire nette de la raie gamma prompte de capture neutronique du fer à l'énergie  $E_\gamma$  (sans dimension),

$n$  : le nombre d'impulsions du générateur de neutrons,

$t_d$  : le temps de mesure des rayonnement gamma prompts de capture neutronique du fer entre deux impulsions (s),

$N(Fe)$  : le nombre de noyaux de fer constituant l'enveloppe métallique du fût de 200 L (sans dimension),

$\sigma_{E_\gamma}(Fe)$  : la section efficace partielle (à l'énergie thermique) de production gamma de la raie prompte de capture neutronique à l'énergie  $E_\gamma$  [AIEA07] (cm<sup>2</sup>),

$\varepsilon_{E_\gamma}$  : l'efficacité de détection de la raie gamma d'énergie  $E_\gamma$  (sans dimension),

$\bar{\Phi}_{th}$  : le flux de neutrons thermiques efficace auquel est soumis le fût béton pendant la mesure des rayonnements gamma prompts de capture neutronique (cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>). Dans cette formule, toutes les captures sont attribuées à des neutrons thermiques, mais en réalité  $\bar{\Phi}_{th}$  intègre aussi les captures de neutrons épithermiques :

$$\bar{\Phi}_{th} = \int_{E=0}^{14 \text{ MeV}} \frac{\sigma(E)}{\sigma(0.025 \text{ eV})} \Phi(E) dE$$

Cette méthode d'estimation du flux de neutrons thermiques dans la matrice a donné lieu à un brevet [Mauerhofer12].

Comme présenté précédemment, un flux thermique s'établit également pendant les impulsions. Il est possible d'estimer ce dernier à partir du flux moyen après impulsions  $\bar{\Phi}_{th}$  connaissant le temps de vie moyen des neutrons thermiques  $\tau$  dans la cellule MEDINA. Le flux de neutrons thermiques après les impulsions est de la forme :

$$\Phi_{th}(t) = \Phi_0 \times e^{-(t-t_i)/\tau}$$

Ainsi, le flux moyen de neutrons thermiques mesuré pendant  $t_d$  après les impulsions peut aussi s'écrire sous la forme :

$$\bar{\Phi}_{th} = \frac{1}{t_d} \times \int_{t_i}^{t_i+t_d} \Phi_{th}(t) dt = \frac{\Phi_0 \times \tau \times (1 - e^{-t_d/\tau})}{t_d}$$

La valeur du flux thermique  $\Phi_0$  à la fin de l'impulsion s'exprime donc :

$$\Phi_0 = \frac{\bar{\Phi}_{th} \times t_d}{\tau \times (1 - e^{-t_d/\tau})}$$

Le flux de neutrons thermiques pendant les impulsions est de la forme [Jordan08] :

$$\Phi_{th}^i(t) = \Phi_\infty (1 - e^{-t/\tau})$$

avec

$$\Phi_\infty = \frac{\Phi_0}{1 - e^{-t_i/\tau}}$$

Le flux moyen de neutrons thermiques pendant les impulsions est alors :

$$\bar{\Phi}_{th}^i = \frac{1}{t_i} \times \int_0^{t_i} \Phi_{th}^i(t) dt = \frac{\Phi_0}{t_i} \times \int_0^{t_i} \frac{1 - e^{-t/\tau}}{1 - e^{-t_i/\tau}} dt$$

Afin de prendre en compte également les fissions induites par les neutrons épithermiques sur les isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$ , un « flux thermique équivalent » pendant l'impulsion,  $\bar{\Phi}_{th\ eq}^i$ , est approximé de la manière suivante [Havenith15] :

$$\bar{\Phi}_{th\ eq}^i = \bar{\Phi}_{th}^i \left[ 1 + \left( 0,44 + \frac{I(U, Pu)}{\sigma_f(U, Pu)} \right) \times 0,182 \right]$$

avec

$\sigma_f(U, Pu)$  : la section efficace de fission thermique ( $E_n = 0,025$  eV) des isotopes  $^{235}\text{U}$  (585 b) ou  $^{239}\text{Pu}$  (747 b)

$I(U, Pu)$  : l'intégrale de résonance des isotopes  $^{235}\text{U}$  (274 b) ou  $^{239}\text{Pu}$  (301 b) [JAEA16]. Dans le domaine de la physique des réacteurs, cette intégrale est définie pour des neutrons épithermiques en cours de ralentissement, typiquement entre 1 eV et 1 MeV (0,5 eV et 10 MeV ici). Dans un modérateur eau, on suppose que le flux de neutrons épithermiques suit une distribution en  $dE/E$  sur cette plage en énergie [Steinnes71]. L'intégrale de résonance s'exprime alors par :

$$I = \int_{0,5\text{ eV}}^{10\text{ MeV}} \frac{\sigma_f(E)}{E} dE$$

Le facteur 0,44 rend compte de l'activation entre l'énergie thermique et 0,5 eV. Il est obtenu en considérant une variation des sections efficaces en  $1/v$ , où  $v$  est la vitesse des neutrons, entre l'énergie thermique et le domaine épithermique [Steinnes71]. Comme nous le verrons par la suite, cette hypothèse n'est pas valide dans le cas de l'isotope  $^{239}\text{Pu}$ , dont la section efficace de fission présente une résonance élevée entre 0,1 et 0,6 eV. Enfin, le coefficient 0,182 correspond au rapport entre les flux épithermique et thermique déterminé par les mesures d'activation de la feuille d'or, comme mentionné précédemment [Havenith15].

L'irradiation pulsée du générateur de neutrons de 14 MeV est alors assimilée à la combinaison de deux irradiations pulsées avec les flux neutroniques thermiques  $\bar{\Phi}_{th\ eq}^i$  et  $\bar{\Phi}_{th}$ , comme illustré en Figure 85.

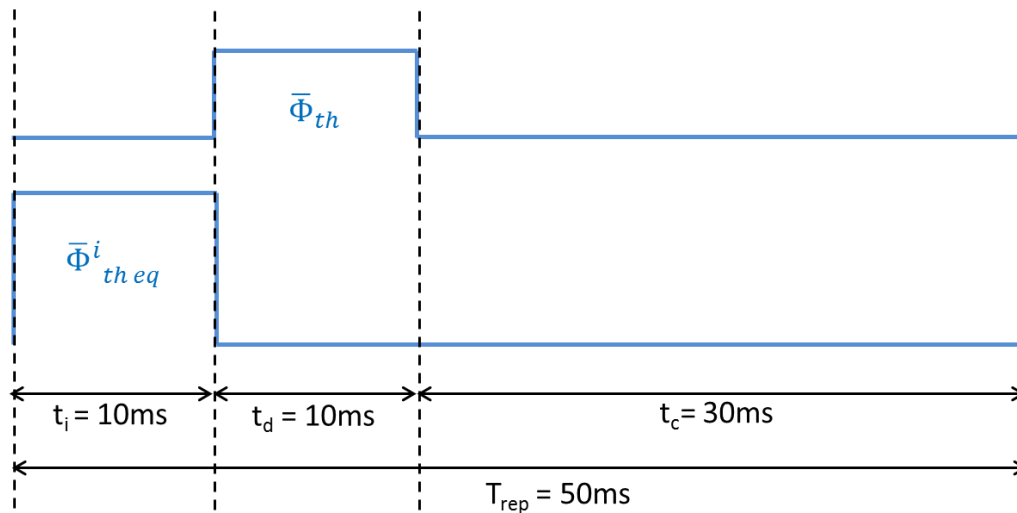


Figure 85. Schéma d'une irradiation pulsée avec des neutrons thermiques résultant de l'irradiation pulsée avec les neutrons de 14 MeV du générateur.

Comme indiqué dans le chapitre III, les mesures ont été effectuées avec et sans source gamma ponctuelle ( $^{60}\text{Co}$  et  $^{137}\text{Cs}$ ) placées à proximité du détecteur (10 cm). Les différentes valeurs de flux moyen de neutrons utiles sont répertoriées dans le Tableau 19 suivant.

Tableau 19. Estimations des flux moyens de neutrons thermiques à partir de la mesure des rayonnements gamma prompts de capture radiative de l'enveloppe en fer d'un fût de 200 L (incertitude statistique entre parenthèses).

	Sans sources gamma	Avec sources gamma ( $^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ )
$\bar{\Phi}_{th}$ ( $\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ )	2050 (6%)	1780 (6%)
$\bar{\Phi}_{th}^i$ ( $\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ )	7000 (8%)	6080 (9%)
$\bar{\Phi}_{th\ eq}^i$ ( $\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ )	8100 (8%)	7050 (9%)

On notera une différence d'environ 15% entre les flux moyens de neutrons utiles mesurés en l'absence et en présence de sources gamma. Celle-ci provient en grande partie d'une variation de l'émission neutronique du générateur entre ces deux mesures, et non d'un problème de temps mort car le taux de comptage apporté par les seules sources gamma est relativement faible (de l'ordre de 8900 c/s, soit un temps mort de 8 %) et les acquisitions sont effectuées en utilisant le mode ZDT (*Zero Dead Time*, voir au paragraphe II.3 du chapitre I) dont l'expérience a montré que la correction d'un tel niveau de temps mort est fiable. Par ailleurs, en mesurant les aires nettes des raies gamma d'activation du germanium par des neutrons rapides et épithermiques (140 keV et 197 keV, voir paragraphe II du chapitre II et paragraphe III du chapitre IV), on observe des écarts équivalents entre les deux acquisitions ( $\approx 11\%$ , voir Tableau 20). Les indicateurs du flux de neutrons que sont les émissions gamma prompts de l'enveloppe métallique du fût (cette annexe) ou les raies gamma d'activation du germanium (chapitres II et IV) semblent donc refléter de manière cohérente les fluctuations de l'émission neutronique du générateur.

Tableau 20. Aires nettes des raies gamma d'activation par les neutrons rapides et épithermiques des isotopes du germanium.

	Sans sources gamma	Avec sources gamma ( <sup>60</sup> Co, <sup>137</sup> Cs)
<b>140 keV</b>	250417 (1%)	223273 (1%)
<b>197 keV</b>	325802 (2%)	297659 (2%)

Par la suite, nous allons utiliser les flux utiles du Tableau 19 pour calculer les nombres de fissions pendant toute la durée de la mesure avec l'équation suivante :

$$N_{fission} = N(U, Pu) \times \sigma_f(U, Pu) \times (\bar{\Phi}_{th} + \bar{\Phi}_{th eq}^i)$$

Avec  $N(U, Pu)$ : le nombre de noyaux des isotopes <sup>235</sup>U ou <sup>239</sup>Pu.

Les valeurs mesurées de flux ( $\bar{\Phi}_{th}$  et  $\bar{\Phi}_{th eq}^i$ ) correspondant à une émission neutronique de  $(7,18 \pm 0,93) \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ , les nombres de fissions pour une émission du générateur de  $2 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$  ont été simplement extrapolés de façon linéaire.

Le nombre de fissions constitue la principale différence entre l'approche analytique décrite dans cette annexe et l'approche par simulation numérique MCNP du chapitre III. Nous avons donc calculé et comparé dans le Tableau 21 les nombres de fissions obtenus par ces deux méthodes, pour 10 g de matière fissile. Pour comparer les deux valeurs, le rapport entre le résultat de simulation et celui estimé à partir de données expérimentales (MCNP / EXP) a été estimé.

Tableau 21. Comparaisons du nombre de fissions estimé dans un fût de 225 L contenant 10 g de matière fissile répartie de manière homogène dans une matrice bétonnée à partir des valeurs de flux utiles mesurés expérimentalement ou à partir de simulations MCNP.

	Pendant les impulsions	Après les impulsions	Total
$N_{fission}^{Exp} (^{239}\text{Pu})$	$6,20 \times 10^8$	$1,58 \times 10^8$	$7,78 \times 10^8$
$N_{fission}^{MCNP} (^{239}\text{Pu})$	$1,01 \times 10^9$	$8,83 \times 10^7$	$1,11 \times 10^9$
<b>MCNP / EXP</b>	1,63	0,56	1,43
$N_{fission}^{Exp} (^{235}\text{U})$	$4,92 \times 10^8$	$1,24 \times 10^8$	$6,16 \times 10^8$
$N_{fission}^{MCNP} (^{235}\text{U})$	$6,61 \times 10^8$	$6,45 \times 10^7$	$7,25 \times 10^8$
<b>MCNP / EXP</b>	1,34	0,52	1,18

Les rapports MCNP / EXP observés pour les isotopes <sup>239</sup>Pu et <sup>235</sup>U sont pratiquement identiques entre les impulsions, de l'ordre de 0,5, alors qu'une différence significative est observée pendant les impulsions et, par suite, sur le nombre total de fissions. Cette différence provient essentiellement des hypothèses simplificatrices utilisées dans cette dernière. La convolution du spectre neutronique réel dans MEDINA avec les sections efficaces de fission complexes des isotopes <sup>235</sup>U et <sup>239</sup>Pu ne peut notamment pas être prise en compte. Le colis de déchets étant en vue directe du générateur de neutrons de 14 MeV, un nombre significatif de fissions peuvent être induites par des neutrons d'énergies supérieures à l'énergie thermique (25 meV). Or, comme on peut le constater sur la

Figure 86, la courbe de section efficace de fission de l'isotope  $^{239}\text{Pu}$  montre une résonance importante entre 100 meV et 600 meV, ce qui n'est pas le cas de l'isotope  $^{235}\text{U}$ .

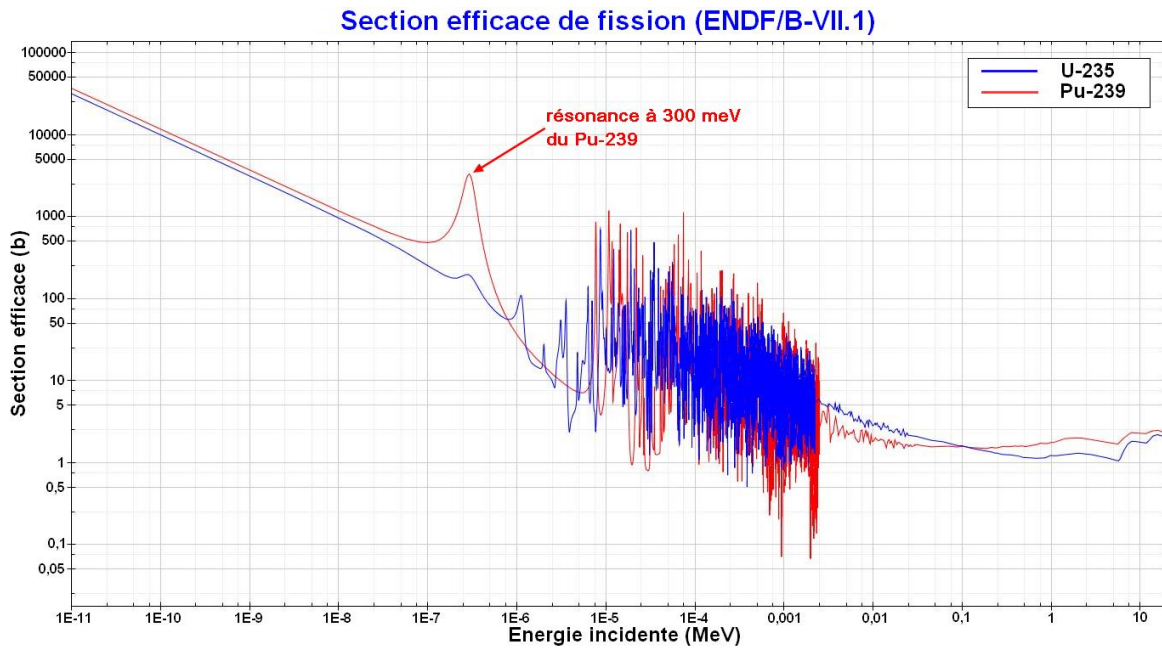


Figure 86. Sections efficaces de fission des isotopes  $^{235}\text{U}$  (en bleu) et  $^{239}\text{Pu}$  (en rouge) [JANIS12].

L'utilisation, dans la méthode analytique, de la section efficace de capture thermique et de l'intégrale de résonance estimée pour des énergies supérieures à 500 meV peut alors induire un biais entre les nombres de fissions induites sur les isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$ . La simulation MCNP permet, au contraire, d'estimer le taux de fissions se produisant à toutes les énergies du flux interrogateur dans le colis de déchets, par une convolution du flux calculé avec les sections efficaces de fission selon une formule du type  $\int \frac{d\phi(E)}{dE} \sigma_f(E) dE$ .

Par contre, entre les impulsions, les ratios MCNP / EXP sont similaires pour les isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$  car la grande majorité des neutrons ont une énergie inférieure à 100 meV, de l'ordre d'un facteur 0,5. Plusieurs causes pourraient expliquer cet écart, nous verrons par exemple à la fin du paragraphe 3.1 dans cette annexe que la prise en compte des murs, de l'agitation thermique moléculaire du graphite de la cellule MEDINA, des blocs de graphite sous la table tournante, et le retrait des impuretés de bore dans le graphite (pour observer l'impact sur le temps de vie des neutrons), conduirait à un nombre de fissions MCNP légèrement plus grand, et donc un rapport MCNP / EXP de 0,61. Par ailleurs d'autres causes peuvent être avancées comme la modélisation des cylindres de béton contenus dans le fût (voir Figure 15, paragraphe III.4 du chapitre III) sous la forme d'une matrice homogène, ainsi que la non considération de l'agitation thermique moléculaire du béton de la matrice et des murs de la salle de mesure. L'incertitude sur l'émission du générateur de neutrons est également une cause potentielle importante d'écart comme signalé au chapitre II (pour les échantillons). Du point de vue de l'approche analytique, on peut aussi signaler le biais intrinsèque propre à l'assimilation du flux de neutrons thermique dans la matrice béton à celui dans le fer constituant l'enveloppe du fût.

Si on se concentre sur l'isotope  $^{235}\text{U}$ , pour lequel le biais évoqué précédemment est moindre, on constate dans le Tableau 21 que le nombre de fissions calculé avec MCNP pendant les impulsions est environ 30 % plus élevé que par l'approche analytique et environ deux fois plus faible entre les impulsions.

Nous allons d'abord analyser une cause potentiellement significative permettant d'expliquer le premier de ces écarts, à savoir la valeur du temps de vie neutronique dans la cellule MEDINA nécessaire à l'estimation du flux de neutrons pendant les impulsions, par l'approche analytique. La Figure 87 représente la décomposition du flux de neutrons moyen dans le fût de 225 L simulé avec MCNP en fonction du temps. Sur cette figure, on observe l'augmentation de flux pendant les 10 ms d'impulsion du générateur, puis sa décroissance après la fin de l'impulsion. Sur la figure, cette dernière a également été représentée en échelle semi-logarithmique pour illustrer la décroissance exponentielle du flux. On remarque alors que la constante de temps correspondant à cette décroissance, *i.e.* le temps de vie moyen des neutrons thermiques  $\tau$ , est de 1,48 ms.

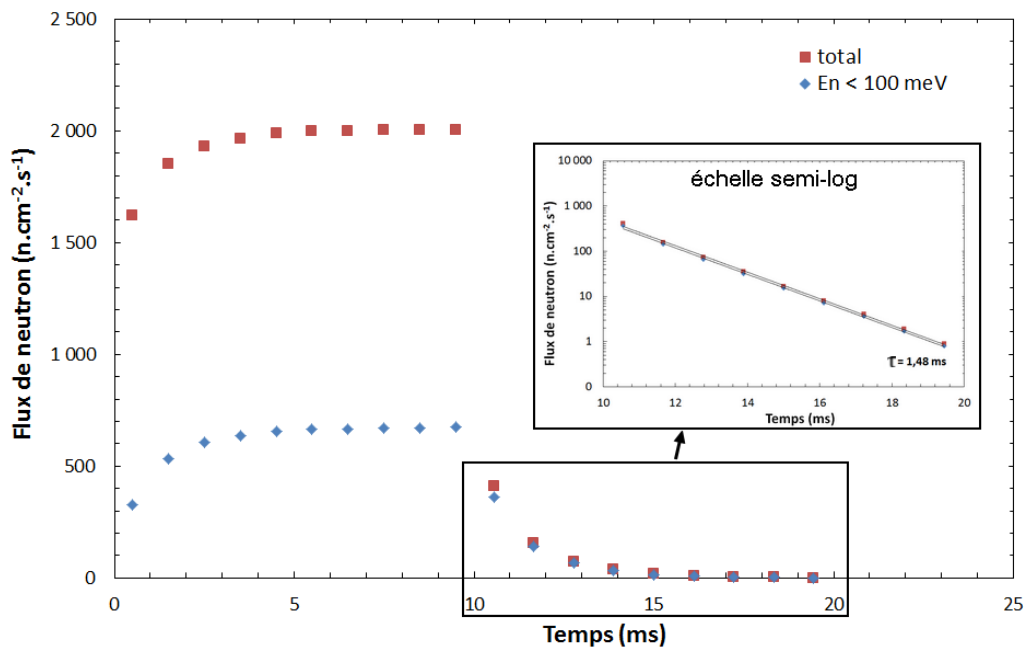


Figure 87. Flux moyen de neutron (total et d'énergie inférieure à 100 meV), en fonction du temps, dans un fût de 225 L contenant une matrice bétonnée, pendant une impulsion du générateur de 10 ms et les 10 ms suivantes.

Or, le temps de vie moyen des neutrons utilisé pour le calcul du nombre de fissions dans l'approche analytique est de 2,3 ms, valeur déterminée à partir de la mesure, en fonction du temps, des aires nettes des rayonnements gamma prompts de captures radiatives de l'isotope  $^{56}\text{Fe}$  de l'enveloppe métallique du colis de déchets contenant une matrice béton [Mildenberger15]. Ces mesures ont été réalisées à intervalles réguliers de 500  $\mu\text{s}$  à la suite d'une impulsion de neutrons de 250  $\mu\text{s}$ . La tension du générateur était fixée à 85 kV, et le courant à 40  $\mu\text{A}$ . Les résultats de ces mesures sont représentés en Figure 88.

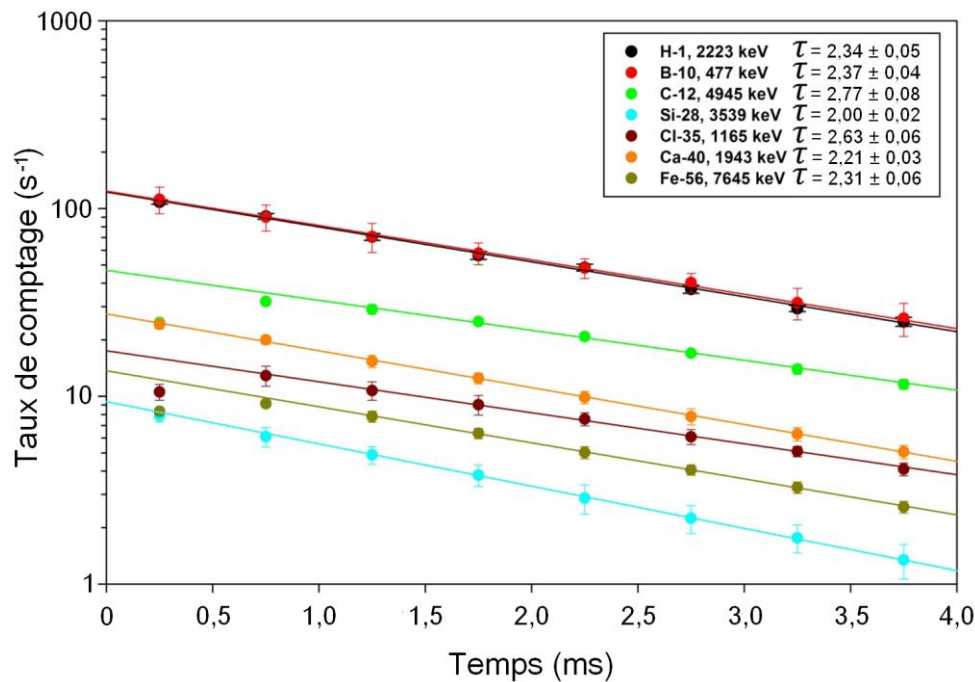


Figure 88. Evolution des aires nettes des rayonnements gamma prompts de capture radiative mesurés dans MEDINA en présence d'un fût de 200 L contenant une matrice bétonnée, à la suite d'une impulsion de neutrons de 250 µs, et estimation des temps de vie moyens des neutrons associés [Mildenberger15].

Les différentes raies d'émission gamma conduisent à des constantes de temps différentes. Néanmoins, le temps de vie moyen des neutrons est toujours supérieur à 2 ms. L'écart avec la valeur estimée par MCNP peut s'expliquer en partie par la différence des moniteurs utilisés. En effet la valeur MCNP (1,48 ms) a été déterminée par rapport au flux de neutrons alors que la valeur expérimentale a été déduite des émissions gamma promptes de captures radiatives induites dans la cellule. Comme exposé dans la référence [Yee09], la mesure du temps de vie à partir des neutrons ou des émissions gamma promptes peut en effet présenter, notamment dans le cas d'une matrice hétérogène contenant peu d'hydrogène, des écarts de 15 % à 30 %.

Des mesures précédentes ont été effectuées dans les mêmes conditions d'acquisition dans la cellule MEDINA, mais avec une intensité du générateur de neutron plus faible (tension et courant fixés à 75 kV et 10 µA). Les résultats représentés en Figure 89 montrent des constantes de temps plus proches de celles observées avec MCNP. Cependant, on notera que ces mesures n'ont pas une aussi bonne statistique de comptage que les précédentes, plus récentes, exposées en Figure 88. De plus, l'ajustement linéaire réalisé en Figure 89 est fortement dépendant des premiers points de mesure, qui présentent une variation plus rapide que les points suivants.



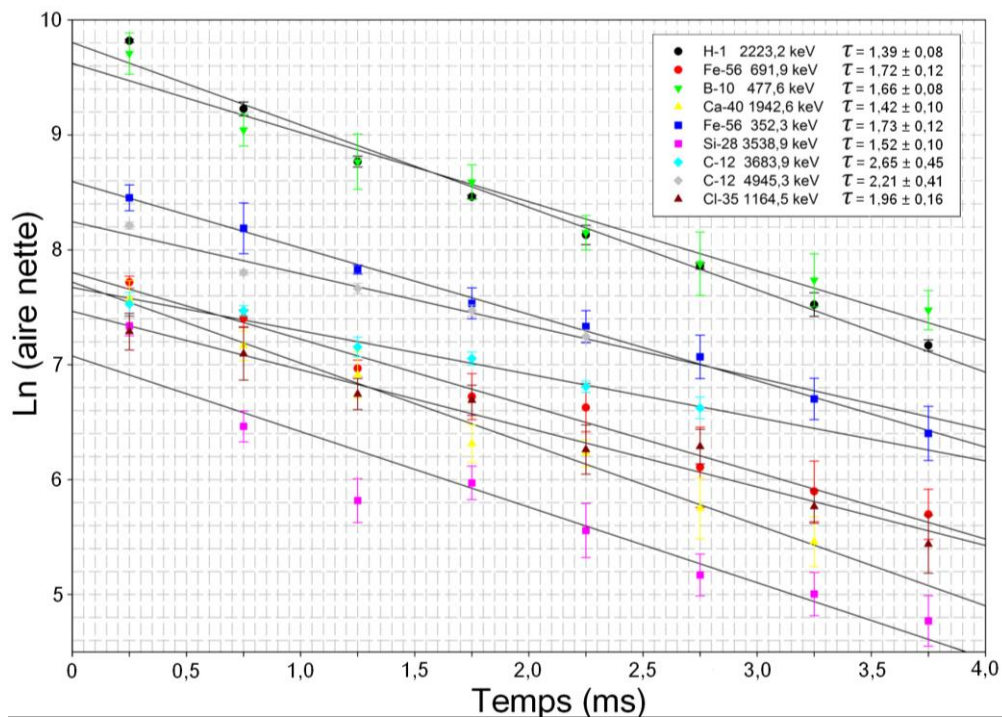


Figure 89. Evolution des aires nettes des rayonnements gamma prompts de capture radiative mesurés dans MEDINA en présence d'un fût de 200 L contenant une matrice bétonnée, à la suite d'une impulsion de neutrons de 250 µs, et estimation des temps de vie moyens des neutrons associés [Havenith15].

Afin d'effectuer une comparaison plus directe des résultats MCNP avec l'expérience, un nouveau calcul a été réalisé afin d'estimer l'amplitude de la raie gamma prompt de capture radiative de l'hydrogène (2,223 MeV) avec un détecteur point (estimateur de flux F5) situé devant le cristal de germanium, pendant l'irradiation neutronique. Cette raie gamma a été choisie car présentant la meilleure statistique de comptage. Pour cette nouvelle simulation, les mêmes paramètres temporels que ceux utilisés pour les mesures expérimentales citées précédemment ont été considérés. Tout comme la mesure expérimentale, le flux gamma ponctuel devant le détecteur tient compte des émissions de rayonnements gamma prompts dans l'ensemble de la cellule MEDINA, pour des isotopes tel que  $^1\text{H}$  dont les données sont disponibles dans la base ENDF/B-VII.0 utilisée ici. Les résultats sont représentés en Figure 90 avec les ajustements fonctionnels pour l'ensemble des points, puis en retirant successivement le premier point, ou les deux premiers points, après l'impulsion du générateur.

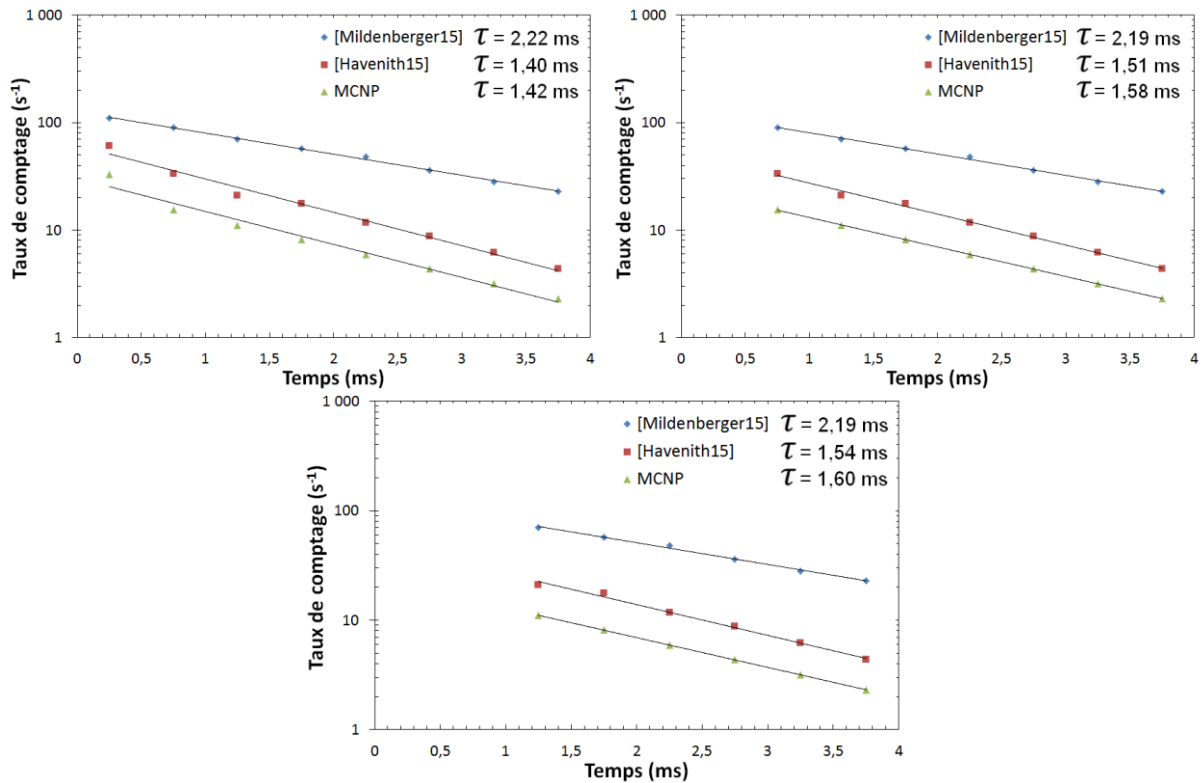


Figure 90. Comparaison entre les références [Mildenberger15], [Havenith15] et la simulation MCNP des variations (en échelle semi-log) de l'aire nette de la raie gamma prompte de capture radiative de l'hydrogène suite à une impulsion du générateur de 250  $\mu$ s et des temps de vie des neutrons associés en fonction du nombre de points considérés pour l'ajustement linéaire.

Les valeurs MCNP représentées en Figure 90 ont été calculées en multipliant le résultat de l'estimateur F5, pris en un point juste devant le détecteur, par la surface du cristal de germanium, l'efficacité de détection à 2,2 MeV calculée en référence [Mauerhofer13] et l'émission du générateur de  $7,18 \times 10^7$  s<sup>-1</sup> [Havenith15]. On peut noter l'impact du premier point sur l'estimation du temps de vie moyen des neutrons à partir des données de MCNP ou de la référence [Havenith15], qui donnent des temps de vie proches et nettement inférieurs à ceux de la référence [Mildenberger15].

Suite à ces observations, une nouvelle estimation du nombre de fissions par l'approche analytique a été réalisée avec un temps de vie moyen des neutrons thermiques de 1,5 ms. Le Tableau 22 présente la nouvelle comparaison entre les deux approches, analytique et MCNP.

Tableau 22. Comparaisons du nombre de fissions estimé dans un fût de 225 L contenant 10 g de matière fissile répartie de manière homogène dans une matrice bétonnée à partir des flux utiles estimés expérimentalement, en considérant ici un temps de vie moyen des neutrons de 1,5 ms, et à partir des simulations MCNP.

	Pendant les impulsions	Après les impulsions	Total
$N_{fission}^{Exp}(^{239}\text{Pu})$	$1,02 \times 10^9$	$1,58 \times 10^8$	$1,18 \times 10^9$
$N_{fission}^{MCNP}(^{239}\text{Pu})$	$1,01 \times 10^9$	$8,83 \times 10^7$	$1,11 \times 10^9$
MCNP / EXP	0,99	0,56	0,94
$N_{fission}^{Exp}(^{235}\text{U})$	$8,25 \times 10^8$	$1,24 \times 10^8$	$9,49 \times 10^8$
$N_{fission}^{MCNP}(^{235}\text{U})$	$6,61 \times 10^8$	$6,45 \times 10^7$	$7,25 \times 10^8$
MCNP / EXP	0,80	0,52	0,76

Avec cette nouvelle valeur de  $\tau$ , les nombres de fissions pendant les impulsions, calculés avec MCNP, sont désormais inférieurs à ceux de la méthode analytique, pour l'isotope  $^{235}\text{U}$  qui présente un plus faible biais que le  $^{239}\text{Pu}$  au niveau de l'intégrale de résonance (approche analytique). Le ratio MCNP / EXP est ici de 0,80 contre 1,34 précédemment avec  $\tau = 2,3$  ms (voir Tableau 3).

On peut aussi souligner que comme le flux thermique mesuré entre les impulsions ne dépend pas du temps de vie  $\tau$ , les nombres de fissions entre les impulsions ne varient donc pas par rapport au Tableau 3 dans l'approche analytique, et le ratio MCNP / EXP reste identique.

Afin de tester d'autres causes possibles de biais entre les approches MCNP et analytique, des simulations MCNP supplémentaires ont été effectuées en considérant l'agitation thermique (ici à température ambiante, 294 K) des molécules de graphite à l'aide de la carte  $S(\alpha, \beta)$ . Cette dernière a pour effet de modifier les sections efficaces de collisions élastiques et inélastiques du matériau considéré pour des énergies de neutrons inférieures à 4 eV, du fait de la prise en compte des liaisons moléculaires et des effets cristallins. De plus, le modèle numérique de la cellule MEDINA a été modifié en retirant les impuretés de bore dans le graphite initialement prises en compte (1,86 ppm [Mauerhofer14]), en ajoutant des blocs de graphite sous la table tournante à l'intérieur de la chambre d'irradiation afin d'être plus conforme à la réalité de la cellule (ceux-ci n'ayant pas été modélisés précédemment, voir Figure 13, paragraphe III.2 du chapitre III), ou en ajoutant des murs de la salle de mesure où se trouve la cellule MEDINA. Ces quatre modifications du modèle numérique induisent, séparément, une augmentation des temps de vie des neutrons de l'ordre de 2 %, 3 %, 4 % et 6 % respectivement. Prises ensemble, ces considérations résultent en un temps de vie des neutrons de 1,73 ms, soit une augmentation de 14 % par rapport à la valeur déterminée à partir de la Figure 87 (1,48 ms). Le nombre de fission entre les impulsions du générateur de neutrons, calculé avec MCNP pour 10 g d'isotope  $^{235}\text{U}$ , s'en trouve alors augmenté de 18 % réduisant l'écart MCNP / EXP à un facteur 0,61 au lieu de 0,52.

On notera que la présence des isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$  dans la matrice béton simulée (10 g de chaque isotope fissile dans un fût de 225 L, soit environ 30 ppm), alors qu'ils ne sont pas présents dans la maquette du fût béton, peut impacter le temps de vie des neutrons dans la cellule. Une nouvelle simulation sans masse fissile a été réalisée, ne montrant aucun effet significatif sur le temps de vie des neutrons. A priori, l'absorption neutronique par ces isotopes est donc contrebalancée par l'effet de multiplication, mais on peut aussi penser qu'avec une telle teneur en isotope diluée dans la matrice de 225 L, ces phénomènes sont marginaux.

Finalement, étant donné l'ensemble des hypothèses et approximations réalisées dans la méthode analytique, notamment l'influence significative du temps de vie des neutrons et les hypothèses simplificatrices utilisées pour estimer les flux et taux de réaction pendant les impulsions, on peut estimer qu'elle donne un ordre de grandeur cohérent des nombres de fissions par rapport aux simulations MCNP. Elle permet donc d'estimer, en première approximation, le taux de fission sans avoir recours à des simulations Monte Carlo.

### 3.2. Limite de détection pour la mesure entre les impulsions du générateur de neutrons

Pour le calcul des limites de détection, nous avons choisi ici de nous baser sur les équations cycliques données dans la référence [Givens70]. Les différentes étapes sont décrites ici :

L'activité induite à la fin de la première impulsion d'une durée  $t_i$  est :

$$A_1 = \Phi_{th} \times N(U, Pu) \times \sigma_f(U, Pu) \times F_c^f(U, Pu) \times (1 - e^{-\lambda_f \times t_i})$$

avec les mêmes notations que précédemment.

Nous considérons ici directement le rendement de fission cumulé des isotopes émetteurs gamma d'intérêt car, comme indiqué dans le chapitre III, les constantes de temps radioactives de leurs isotopes précurseurs sont suffisamment courtes par rapport au temps total d'irradiation. La quasi-totalité ( $\approx 99\%$ ) des isotopes précurseurs auront donc décru pendant la durée d'irradiation.

L'activité à la fin de la première période d'attente  $t_d$  après l'impulsion est :

$$A_{11} = \Phi_{th} \times N(U, Pu) \times \sigma_f(U, Pu) \times F_c^f(U, Pu) \times (1 - e^{-\lambda_f \times t_i}) \times e^{-\lambda_f \times t_d}$$

D'après les équations d'activation cyclique développées en référence [Guivens70], le signal mesuré entre  $n$  impulsions est :

$$S_{E_\gamma nT} = \frac{\Phi_{th} \times N(U, Pu) \times \sigma_f(U, Pu) \times F_c^f(U, Pu) \times I_{E_\gamma} \times \varepsilon_{E_\gamma}}{\lambda_f} \times (1 - e^{-\lambda_f \times t_i}) \times e^{-\lambda_f \times t_d} \\ \times (1 - e^{-\lambda_f \times t_c}) \times \left[ \frac{n}{1 - e^{-\lambda_f \times T_{rep}}} - \frac{e^{-\lambda_f \times T} (1 - e^{-n \times \lambda_f \times T_{rep}})}{(1 - e^{-\lambda_f \times T_{rep}})^2} \right]$$

Comme indiqué précédemment, le chronogramme utilisé (voir Figure 83) équivaut à deux irradiations pulsées sous deux flux thermiques différents, comme illustré en Figure 85, on obtient donc deux expressions de signaux :

- 1) un signal gamma retardé induit par une irradiation sous un flux thermique utile  $\bar{\Phi}_{th}$  pendant  $t_d$  (10 ms) suivie directement de la mesure pendant  $t_c$  (30 ms) qui, cumulé après  $n$  cycles, s'exprime par :

$$S_{E_\gamma}^1 = \frac{\bar{\Phi}_{th} \times N(U, Pu) \times \sigma_f(U, Pu) \times F_c^f(U, Pu) \times I_{E_\gamma} \times \varepsilon_{E_\gamma}}{\lambda_f} \times (1 - e^{-\lambda_f \times t_d})$$

$$\times (1 - e^{-\lambda_f \times t_c}) \times \left[ \frac{n}{1 - e^{-\lambda_f \times T_{rep}}} - \frac{e^{-\lambda_f \times T} (1 - e^{-n \times \lambda_f \times T_{rep}})}{(1 - e^{-\lambda_f \times T_{rep}})^2} \right]$$

- 2) un signal gamma retardé induit par une irradiation sous un flux thermique équivalent  $\bar{\Phi}_{th eq}^i$  pendant  $t_i$  (10 ms) suivi d'un temps d'attente  $t_d$  (10 ms) puis de la mesure pendant  $t_c$  (30 ms) qui, cumulé après  $n$  cycles, s'exprime par :

$$S_{E_\gamma}^2 = \frac{\bar{\Phi}_{th eq}^i \times N(U, Pu) \times \sigma_f(U, Pu) \times F_c^f(U, Pu) \times I_{E_\gamma} \times \varepsilon_{E_\gamma}}{\lambda_f} \times (1 - e^{-\lambda_f \times t_i}) \times e^{-\lambda_f \times t_d}$$

$$\times (1 - e^{-\lambda_f \times t_c}) \times \left[ \frac{n}{1 - e^{-\lambda_f \times T_{rep}}} - \frac{e^{-\lambda_f \times T} (1 - e^{-n \times \lambda_f \times T_{rep}})}{(1 - e^{-\lambda_f \times T_{rep}})^2} \right]$$

Les nombres de noyaux  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$ , correspondant aux limites de détection de ces deux isotopes, s'obtiennent alors à partir de la somme de ces deux signaux et de la valeur de limite de détection en nombre de coup  $LD(E_\gamma)$  (équation (8) du chapitre III), on veut :

$$S_{E_\gamma}^1 + S_{E_\gamma}^2 = LD(E_\gamma)$$

### 3.3. Limite de détection pour la mesure après irradiation

Concernant les mesures après irradiation, la nécessité de considérer les rendements de fission des isotopes précurseurs à l'émetteur gamma d'intérêt rend difficile l'établissement des équations du signal sur la base de la même méthode développée dans la référence [Givens70]. Toutefois, la constante de décroissance de l'isotope d'intérêt  $^{92}\text{Sr}$  (9756 s) étant très supérieure à celle de son isotope précurseur direct ( $^{92}\text{Rb}$ , 4,49 s), il est possible de considérer directement le rendement de fission cumulé de l'isotope  $^{92}\text{Sr}$ . Ainsi nous obtenons pour cet isotope l'activité à la fin d'une irradiation cyclique ( $n \times T_{\text{rep}}$ ) et due à la première impulsion d'une durée  $t_i$  :

$$A_1 = \Phi_{th} \times N(U, Pu) \times \sigma_f(U, Pu) \times F_c^f(U, Pu) \times (1 - e^{-\lambda_f \times t_i}) \times e^{-\lambda_f \times (n \times T_{\text{rep}} - t_i)}$$

L'activité à la fin d'une période de transfert ( $T_d$ ) suivant l'irradiation ( $n \times T_{\text{rep}}$ ), due à la première impulsion d'une durée  $t_i$  :

$$A_{11} = \Phi_{th} \times N(U, Pu) \times \sigma_f(U, Pu) \times F_c^f(U, Pu) \times (1 - e^{-\lambda_f \times t_i}) \times e^{-\lambda_f \times (T_d + n \times T_{\text{rep}} - t_i)}$$

La réponse du détecteur pour une période de comptage  $T_c$ , due à la première impulsion est donc :

$$\begin{aligned} S_{E_{\gamma 1}} &= A_{11} \times \varepsilon_{E_{\gamma}} \times \int_0^{T_c} e^{-\lambda_f \times t} dt \\ &= \frac{\Phi_{th} \times N(U, Pu) \times \sigma_f(U, Pu) \times F_c^f(U, Pu) \times I_{E_{\gamma}} \times \varepsilon_{E_{\gamma}}}{\lambda_f} \times (1 - e^{-\lambda_f \times t_i}) \\ &\quad \times e^{-\lambda_f \times (T_d + n \times T_{\text{rep}} - t_i)} \times (1 - e^{-\lambda_f \times T_c}) \end{aligned}$$

La réponse du détecteur pour une période de comptage  $T_c$ , due à la deuxième impulsion est :

$$\begin{aligned} S_{E_{\gamma 2}} &= \frac{\Phi_{th} \times N(U, Pu) \times \sigma_f(U, Pu) \times F_c^f(U, Pu) \times I_{E_{\gamma}} \times \varepsilon_{E_{\gamma}}}{\lambda_f} \times (1 - e^{-\lambda_f \times t_i}) \\ &\quad \times e^{-\lambda_f \times (T_d + (n-1) \times T_{\text{rep}} - t_i)} \times (1 - e^{-\lambda_f \times T_c}) \end{aligned}$$

La réponse du détecteur pour une période de comptage  $T_c$  due à la  $n^{\text{ème}}$  impulsion est :

$$\begin{aligned} S_{E_{\gamma n}} &= \frac{\Phi_{th} \times N(U, Pu) \times \sigma_f(U, Pu) \times F_c^f(U, Pu) \times I_{E_{\gamma}} \times \varepsilon_{E_{\gamma}}}{\lambda_f} \times (1 - e^{-\lambda_f \times t_i}) \times e^{-\lambda_f \times (T_d + T_{\text{rep}} - t_i)} \\ &\quad \times (1 - e^{-\lambda_f \times T_c}) \end{aligned}$$

La réponse globale du détecteur pour n impulsions successives est donc :

$$S_{E_\gamma nT} = \sum_1^n S_{E_\gamma n}$$

$$= \frac{\Phi_{th} \times N(U, Pu) \times \sigma_f(U, Pu) \times F_c^f(U, Pu) \times I_{E_\gamma} \times \varepsilon_{E_\gamma}}{\lambda_f} \times (1 - e^{-\lambda_f \times t_i})$$

$$\times (1 - e^{-\lambda_f \times T_c}) \times e^{-\lambda_f \times (T_d - t_i)} \sum_1^n e^{-\lambda_f \times (n \times T_{rep})}$$

Le dernier terme peut s'écrire :

$$\sum_1^n e^{-\lambda_f \times (n \times T_{rep})} = \frac{e^{-\lambda_f \times T_{rep}} \times (1 - e^{-n \times \lambda_f \times T_{rep}})}{1 - e^{-\lambda_f \times T_{rep}}}$$

Finalement le signal mesuré après une irradiation de n impulsions et un temps de transfert  $T_d$  est :

$$S_{E_\gamma nT} = \frac{\Phi_{th} \times N(U, Pu) \times \sigma_f(U, Pu) \times F_c^f(U, Pu) \times I_{E_\gamma} \times \varepsilon_{E_\gamma}}{\lambda_f} \times (1 - e^{-\lambda_f \times t_i})$$

$$\times e^{-\lambda_f \times (T_d - t_i)} \times (1 - e^{-\lambda_f \times T_c}) \times \frac{e^{-\lambda_f \times T_{rep}} \times (1 - e^{-n \times \lambda_f \times T_{rep}})}{1 - e^{-\lambda_f \times T_{rep}}}$$

Comme indiqué précédemment, le chronogramme utilisé (voir Figure 83) équivaut à deux irradiations pulsées sous deux flux thermiques différents, comme illustré en Figure 85, on obtient donc deux expressions de signaux :

- 1) un signal gamma retardé induit par une irradiation sous un flux thermique utile  $\bar{\Phi}_{th}$  pendant  $t_d$  (10 ms) :

$$S_{E_\gamma}^1 = \frac{\bar{\Phi}_{th} \times N(U, Pu) \times \sigma_f(U, Pu) \times F_c^f(U, Pu) \times I_{E_\gamma} \times \varepsilon_{E_\gamma}}{\lambda_f} \times (1 - e^{-\lambda_f \times t_d})$$

$$\times e^{-\lambda_f \times (T_d - t_i - t_d)} \times \frac{e^{-\lambda_f \times T_{rep}} \times (1 - e^{-n \times \lambda_f \times T_{rep}})}{(1 - e^{-\lambda_f \times T_{rep}})} \times (1 - e^{-\lambda_f \times T_c})$$

- 2) un signal gamma retardé induit par une irradiation sous un flux thermique équivalent  $\bar{\Phi}_{th}^i$  pendant  $t_i$  (10 ms) :

$$S_{E_\gamma}^1 = \frac{\bar{\Phi}_{th}^i \times N(U, Pu) \times \sigma_f(U, Pu) \times F_c^f(U, Pu) \times I_{E_\gamma} \times \varepsilon_{E_\gamma}}{\lambda_f} \times (1 - e^{-\lambda_f \times t_i})$$

$$\times e^{-\lambda_f \times (T_d - t_i)} \times \frac{e^{-\lambda_f \times T_{rep}} \times (1 - e^{-n \times \lambda_f \times T_{rep}})}{(1 - e^{-\lambda_f \times T_{rep}})} \times (1 - e^{-\lambda_f \times T_c})$$

On retrouve alors les nombres de noyaux  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$  nécessaires pour obtenir un signal total égal à la limite de détection en nombre de coups  $LD(E_\gamma)$  (équation (8) du chapitre III). On en déduit alors les limites de détection (en grammes d'isotope fissile  $^{235}\text{U}$  ou  $^{239}\text{Pu}$ ) de ces deux isotopes.

On notera qu'il serait également envisageable d'utiliser les équations développées précédemment en annexe 2 et utilisées dans le chapitre III. Cependant, le flux moyen de neutrons thermiques mesuré est spécifique aux fenêtres temporelles correspondantes (durée d'impulsions  $n \times t_i$  et temps de comptage des rayonnements prompts de capture radiative  $n \times t_c$ ) et ne peut donc pas être utilisé dans le cas d'une application numérique sous irradiation continue. Il serait alors nécessaire de le normaliser par rapport au temps total d'irradiation ( $n \times T_{\text{rep}}$ ).

Comme mentionné précédemment la valeur de  $\bar{\Phi}_{th\ eq}^i$  dépend du temps de vie moyen des neutrons thermiques considérés. Les limites de détection ( $LD_2$ ) présentées ci-dessous correspondent donc, d'une part, à la valeur mesurée la plus récente [Mildenberger15], soit 2,3 ms (Tableau 23), et d'autre part, à une valeur de 1,5 ms (Tableau 24).

Le ratio entre  $LD_2$  et les limites de détection obtenues par simulation MCNP (paragraphe III.4 du chapitre III) notées ici  $LD_1$ , est aussi indiqué. On notera que la méthode analytique décrite dans cette annexe fait appel aux rendements d'émissions des rayonnements gamma retardés de fission tabulés, alors que les valeurs données dans le chapitre III ont été déterminées à partir des données expérimentales mesurées dans la cellule REGAIN. Afin de pouvoir comparer les deux méthodes, la valeur du chapitre III ( $LD_1$ ) a donc été multipliée par le rapport R des rendements d'émission des rayonnements gamma retardés tabulés et mesurés dans REGAIN (voir Tableau 4, au paragraphe II.2 du chapitre III).

Tableau 23. Valeurs des limites de détection  $LD_2$  déterminées à l'aide de la méthode expérimentale développée dans cette annexe avec un temps de vie des neutrons de 2,3 ms, et rapports avec celles estimées à partir des mesures dans la cellule REGAIN ( $LD_1$ ) et du taux de fission calculé avec MCNP dans le colis béton, comme exposé au chapitre III (cas sans émission parasite d'isotopes radioactifs  $^{60}\text{Co}$  et  $^{137}\text{Cs}$ ).

E (keV)	$^{239}\text{Pu}$		$^{235}\text{U}$	
	$LD_2$ (g)	$LD_2/(LD_1 \times R)$	$LD_2$ (g)	$LD_2/(LD_1 \times R)$
<b>830</b>	90 (9%)	1,49 (7%)	44 (6%)	1,22 (7%)
<b>952</b>	124 (7%)	1,46 (7%)	117 (7%)	1,20 (7%)
<b>973</b>	40 (6%)	1,44 (7%)	41 (6%)	1,19 (7%)
<b>1312</b>	20 (6%)	1,45 (7%)	22 (6%)	1,17 (7%)
<b>1384</b>	28 (7%)	1,44 (7%)	17 (7%)	1,18 (7%)
<b>1427</b>	27 (8%)	1,44 (7%)	18 (7%)	1,18 (7%)



Tableau 24. Valeurs des limites de détection LD<sub>2</sub> déterminées à l'aide de la méthode expérimentale développée dans cette annexe avec un temps de vie des neutrons de 1,5 ms, et rapports avec celles estimées au chapitre III, LD<sub>1</sub> (cas sans émission parasite d'isotopes radioactifs <sup>60</sup>Co et <sup>137</sup>Cs).

E (keV)	<sup>239</sup> Pu		<sup>235</sup> U	
	LD <sub>2</sub> (g)	LD <sub>2</sub> /(LD <sub>1</sub> ×R)	LD <sub>2</sub> (g)	LD <sub>2</sub> /(LD <sub>1</sub> ×R)
<b>830</b>	58 (10%)	0,98 (7%)	28 (9%)	0,81 (7%)
<b>952</b>	81 (8%)	0,96 (7%)	76 (8%)	0,80 (7%)
<b>973</b>	26 (6%)	0,94 (7%)	27 (6%)	0,79 (7%)
<b>1312</b>	13 (6%)	0,95 (7%)	14 (6%)	0,78 (7%)
<b>1384</b>	18 (9%)	0,94 (7%)	11 (8%)	0,77 (7%)
<b>1427</b>	17 (7%)	1,06 (7%)	12 (8%)	0,79 (7%)

Si l'on considère les rapports LD<sub>2</sub>/LD<sub>1</sub> de l'isotope <sup>235</sup>U, pour lequel le biais sur l'intégrale de résonance est a priori plus faible, on observe dans le Tableau 23 une surestimation de l'ordre de 20% des limites de détection par la méthode analytique (LD<sub>2</sub>) par rapport à celles basées sur la simulation MCNP (LD<sub>1</sub>). La différence observée correspond aux écarts des nombres de fissions estimés avec les deux approches en considérant un temps de vie moyen des neutrons thermiques τ de 2,3 ms (cf. Tableau 21). Pour une valeur de τ de 1,5 ms, le Tableau 24 montre que l'approche analytique sous-estime cette fois les limites de détection de 20%, pour la même raison (cf. Tableau 22).

En considérant l'ensemble des sources d'incertitudes exposées précédemment, notamment les hypothèses simplificatrices de l'approche analytique et sa sensibilité au temps de vie des neutrons, paramètre difficile à mesurer avec précision, on peut considérer que les deux méthodes donnent des ordres de grandeur cohérents. La mesure analytique associée aux données tabulées permet par conséquent d'estimer de façon rapide, en première approximation, les performances de la méthode de mesure des rayonnements gamma retardés de fission sans avoir recours à des simulations Monte Carlo, plus longues et plus complexes à mettre en œuvre.

## Annexe 4 : Efficacité des blindages testés par simulation MCNP

Cette annexe donne le détail des rapports des courants neutroniques et photoniques pour les six configurations étudiées avec MCNP et présentées au paragraphe II du chapitre IV (Figure 6 et Figure 7).

### 4.1. Courants de neutrons

Tableau 25. Rapports des courants de neutrons d'énergie supérieure à 1 MeV entre la configuration initiale et les configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite, Gauche, Haut, Bas, Avant et Arrière), et rapport des courants totaux (Total), pendant les impulsions neutroniques. Les incertitudes relatives (statistiques des calculs MCNP) sont ici inférieures à 2 % pour la face arrière et 1 % pour les autres valeurs.

Faces Config.	Gauche	Droite	Haut	Bas	Avant	Arrière	Total
A	4,2	2,3	2,3	2,3	2,5	2,8	2,6
B	6,5	3,5	4,0	3,7	3,2	4,6	3,8
C	5,8	3,2	3,6	3,4	3,2	3,9	3,6
D	5,5	3,0	3,4	3,2	3,1	3,9	3,4
E	7,4	4,0	4,6	4,1	3,8	4,9	4,4
F	8,6	4,7	5,3	4,8	3,9	6,3	4,8

Tableau 26. Rapports des courants de neutrons d'énergie inférieure à 1 keV entre la configuration initiale et les configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite, Gauche, Haut, Bas, Avant et Arrière), et rapport des courants totaux (Total), pendant les impulsions neutroniques. Les incertitudes relatives (statistiques des calculs MCNP) sont ici inférieures à 2 % pour la face arrière et 1 % pour les autres valeurs.

Faces Config.	Gauche	Droite	Haut	Bas	Avant	Arrière	Total
A	1,4	1,4	1,4	1,4	1,2	1,6	1,3
B	2,0	2,0	2,0	1,9	1,2	2,4	1,6
C	2,1	2,1	2,0	2,0	1,3	2,6	1,7
D	2,1	2,0	2,1	2,0	1,3	2,5	1,7
E	3,8	3,8	3,7	3,5	2,1	4,7	2,9
F	4,7	4,7	4,6	4,3	2,2	7,8	3,3

Tableau 27. Rapports des courants de neutrons d'énergie inférieure à 1 keV entre la configuration initiale et les configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite, Gauche, Haut, Bas, Avant), et rapport des courants totaux (Total), entre les impulsions neutroniques. Les incertitudes relatives (statistiques des calculs MCNP) sont ici inférieures à 2 % sauf pour la face arrière où la statistique n'est pas suffisante pour que les résultats soient pertinents.

Faces Config.	Faces						
	Gauche	Droite	Haut	Bas	Avant	Arrière	Total
A	1,2	1,2	1,2	1,2	1,1	∅	1,1
B	1,5	1,4	1,4	1,4	1,1	∅	1,1
C	1,3	1,3	1,3	1,2	1,1	∅	1,1
D	1,2	1,2	1,2	1,1	1,2	∅	1,2
E	2,1	2,1	2,0	2,0	2,4	∅	2,4
F	2,2	2,3	2,1	2,1	2,4	∅	2,4

## 4.2. Courants de photons

Tableau 28. Rapports des courants de photons d'énergie 4.4 MeV (rayonnement prompt de diffusion inélastique des neutrons rapides sur l'isotope <sup>12</sup>C) entre la configuration initiale et les configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite, Gauche, Haut, Bas, Avant et Arrière), et rapport des courants totaux (Total), pendant les impulsions neutroniques. Les incertitudes relatives (statistiques des calculs MCNP) sont mentionnées entre parenthèses. Pour les dernières configurations, la statistique pour la face arrière n'est pas suffisante pour que les résultats soient pertinents.

Faces Config.	Faces						
	Gauche	Droite	Haut	Bas	Avant	Arrière	Total
A	5,7 (2 %)	2,4 (2 %)	2,5 (2 %)	2,5 (2 %)	2,4 (1 %)	4,4 (6 %)	2,7 (1 %)
B	9,4 (2 %)	3,7 (2 %)	4,5 (2 %)	4,0 (2 %)	3,1 (1 %)	7,3 (7 %)	3,9 (1 %)
C	21,9 (4 %)	12,7 (4 %)	10,8 (4 %)	10,0 (4 %)	3,1 (1 %)	∅	5,2 (1 %)
D	65,8 (6 %)	44,5 (7 %)	19,3 (5 %)	17,6 (5 %)	3,8 (1 %)	∅	7,0 (1 %)
E	61,6 (6 %)	46,2 (7 %)	19,6 (5 %)	17,1 (5 %)	3,7 (1 %)	∅	6,9 (1 %)
F	61,8 (6 %)	45,7 (7 %)	19,7 (5 %)	17,2 (5 %)	3,7 (1 %)	∅	6,9 (1 %)

Tableau 29. Rapports des intégrales de courants de photons d'énergie supérieure à 50 keV entre la configuration initiale et les configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite, Gauche, Haut, Bas, Avant et Arrière), et rapport des courants totaux (Total), pendant les impulsions neutroniques. Les incertitudes relatives (statistiques des calculs MCNP) sont ici inférieures à 2 % pour la face arrière et 1 % pour les autres valeurs.

Faces Config.	Faces						
	Gauche	Droite	Haut	Bas	Avant	Arrière	Total
A	2,7	1,9	1,9	1,9	1,8	2,4	2,0
B	3,8	2,7	3,0	2,9	2,1	3,5	2,7
C	7,6	5,9	6,3	6,0	2,2	8,6	3,9
D	9,6	7,1	7,3	7,1	2,7	9,0	4,8
E	11,2	8,1	8,6	8,1	2,7	11,1	5,1
F	12,0	8,4	9,2	8,6	2,7	12,8	5,2

Tableau 30. Rapports des courants de photons d'énergie 2.2 MeV (rayonnement prompt de capture radiative des neutrons thermiques sur l'isotope  $^1\text{H}$ ) entre la configuration initiale et les configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite, Gauche, Haut, Bas, Avant et Arrière), et rapport des courants totaux (Total), entre les impulsions neutroniques. Les incertitudes relatives (statistiques des calculs MCNP) sont mentionnées entre parenthèses. La statistique pour la face arrière n'est pas suffisante pour que les résultats soient pertinents.

Faces Config.	Faces						
	Gauche	Droite	Haut	Bas	Avant	Arrière	Total
A	1,7 (8 %)	1,8 (8 %)	1,2 (4 %)	0,9 (6 %)	1,2 (2 %)	∅	1,2 (2 %)
B	3,3 (10 %)	3,5 (10 %)	5,7 (7 %)	1,4 (6 %)	1,8 (3 %)	∅	2,1 (2 %)
C	4,8 (11 %)	5,2 (12 %)	8,3 (8 %)	2,0 (7 %)	1,8 (3 %)	∅	2,4 (2 %)
D	4,7 (11 %)	4,7 (12 %)	10,2 (9 %)	2,4 (7 %)	1,7 (3 %)	∅	2,4 (2 %)
E	4,7 (11 %)	4,9 (12 %)	11,4 (9 %)	2,5 (8 %)	1,8 (3 %)	∅	2,5 (2 %)
F	3,9 (10 %)	3,7 (11 %)	9,6 (8 %)	2,2 (7 %)	1,8 (3 %)	∅	2,4 (2 %)

Tableau 31. Rapports des courants de photons d'énergie 4.9 MeV (rayonnement prompt de capture radiative des neutrons thermiques sur l'isotope  $^{12}\text{C}$ ) entre la configuration initiale et les configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite, Gauche, Haut, Bas, Avant et Arrière), et rapport des courants totaux (Total), entre les impulsions neutroniques. Les incertitudes relatives (statistiques des calculs MCNP) sont mentionnées entre parenthèses. Pour les dernières configurations, la statistique pour la face arrière n'est pas suffisante pour que les résultats soient pertinents.

Faces Config.	Faces						
	Gauche	Droite	Haut	Bas	Avant	Arrière	Total
<b>A</b>	1,2 (4 %)	1,2 (4 %)	1,2 (4 %)	1,1 (4 %)	1,0 (3 %)	1,3 (12 %)	1,1 (2 %)
<b>B</b>	1,3 (4 %)	1,4 (4 %)	1,3 (4 %)	1,3 (4 %)	0,9 (3 %)	1,8 (14 %)	1,2 (2 %)
<b>C</b>	6,6 (7 %)	8,4 (8 %)	6,1 (7 %)	6,7 (7 %)	1,0 (3 %)	∅	2,6 (2 %)
<b>D</b>	53,1 (19 %)	46,4 (18 %)	23,9 (14 %)	26,2 (14 %)	1,9 (4 %)	∅	6,0 (3 %)
<b>E</b>	89,6 (25 %)	61,9 (21 %)	41,0 (18 %)	32,9 (15 %)	2,8 (4 %)	∅	9,0 (4 %)
<b>F</b>	79,6 (24 %)	59,4 (20 %)	43,8 (18 %)	33,7 (16 %)	2,8 (4 %)	∅	8,9 (4 %)

Tableau 32. Rapports des intégrales de courants de photons d'énergie supérieure à 50 keV entre la configuration initiale et les configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite, Gauche, Haut, Bas, Avant et Arrière), et rapport des courants totaux (Total), entre les impulsions neutroniques. Les incertitudes relatives (statistiques des calculs MCNP) sont ici inférieures à 4 % pour la face arrière et 2 % pour les autres valeurs.

Faces Config.	Faces						
	Gauche	Droite	Haut	Bas	Avant	Arrière	Total
<b>A</b>	1,2	1,2	1,1	1,1	1,1	1,2	1,1
<b>B</b>	1,5	1,5	1,6	1,4	1,2	1,5	1,4
<b>C</b>	2,8	2,8	2,9	2,7	1,3	3,9	2,0
<b>D</b>	3,1	3,1	3,3	3,1	1,4	4,4	2,3
<b>E</b>	6,9	6,6	7,0	6,3	2,0	10,8	3,8
<b>F</b>	6,8	6,4	6,8	6,1	1,9	11,1	3,8

## Annexe 5 : Test de l'outil de traitement des spectres gamma SINBAD

Dans le cadre de l'amélioration du traitement des spectres gamma, les performances de l'outil de Spectrométrie par Inférence Non paramétrique BAYésienne Déconvolutive (SINBAD) développé par le CEA LIST [Barat07, Rohée15], ont été étudiées. Le logiciel de traitement Gamma-W (Westmeier GmbH), utilisé actuellement, implique une analyse raie par raie de la part de l'opérateur qui peut prendre plusieurs heures pour des spectres d'activation neutronique pulsée très riches en raies gamma. L'outil SINBAD permet une analyse automatique et rapide de tels spectres, sans a priori sur la position des pics. L'utilisation en routine de cet outil de traitement basé sur une tout autre approche que le logiciel actuel nécessiterait une étude approfondie qui ne fait pas l'objet des travaux présentés dans ce mémoire. Cependant, une première comparaison entre les traitements de spectres gamma passifs (sources isotopiques d'étalonnage) et d'activation neutronique pulsée à l'aide de SINBAD et de Gamma-W a été réalisée.

Pour l'acquisition du spectre passif, afin d'effectuer la comparaison à partir de spectres gamma non entachés de la dégradation de la résolution du cristal de germanium par les neutrons rapides, un spectre acquis en 2012 a été utilisé. Pour cette mesure, quatre sources ponctuelles ( $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  et  $^{241}\text{Am}$ ) ont été placées à 105 cm du détecteur et à la même hauteur que le centre du détecteur, à l'aide d'un support métallique (Figure 91).

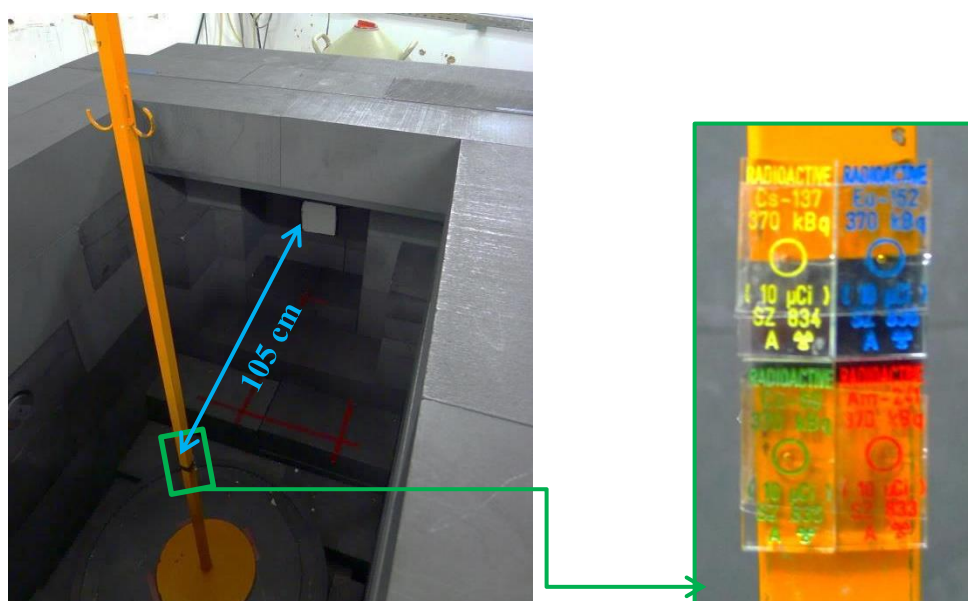


Figure 91. Disposition de quatre sources gamma ponctuelles ( $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  et  $^{241}\text{Am}$ ) au centre de la cellule MEDINA.

D'après les certificats de chacune des sources, les activités respectives en  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  et  $^{241}\text{Am}$  étaient de 430 kBq, 363 kBq, 393 kBq et 393 kBq. Celles-ci étaient valables à la date du 1<sup>er</sup> janvier 2010, les spectres ayant été acquis le 31 juillet 2012, les activités étaient alors de 206 kBq, 360 kBq, 295 kBq et 339 kBq. La zone du spectre comprenant l'ensemble des rayonnements gamma émis par les quatre sources ponctuelles, obtenu après une mesure de 252000 s, est représentée en Figure 92.

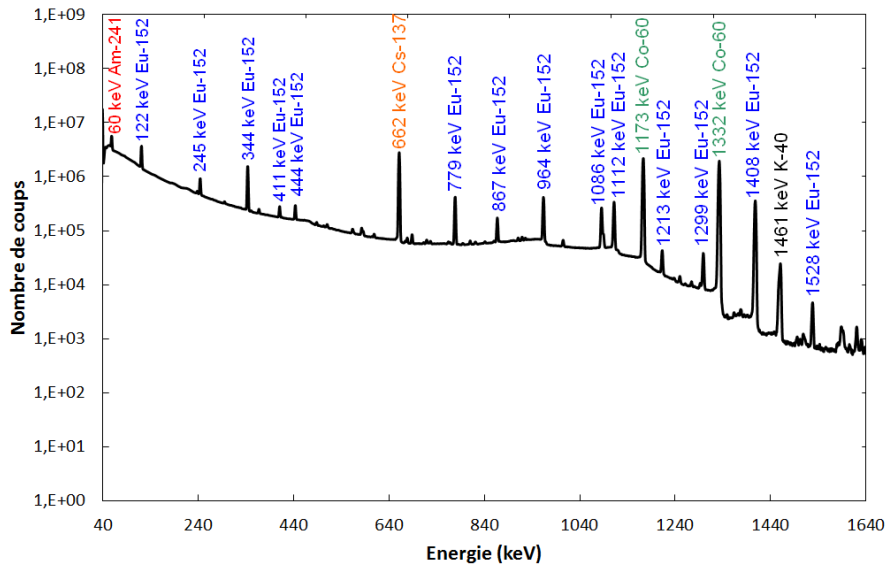


Figure 92. Zone du spectre gamma passif comprenant l'ensemble des raies gamma des quatre sources ponctuelles ( $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  et  $^{241}\text{Am}$ ).

Les aires nettes de chacune des raies gamma sont alors extraites à l'aide du logiciel de spectrométrie Gamma-W, d'une part, et de SINBAD, d'autre part. Les rapports entre ces deux valeurs est reporté en Figure 93.

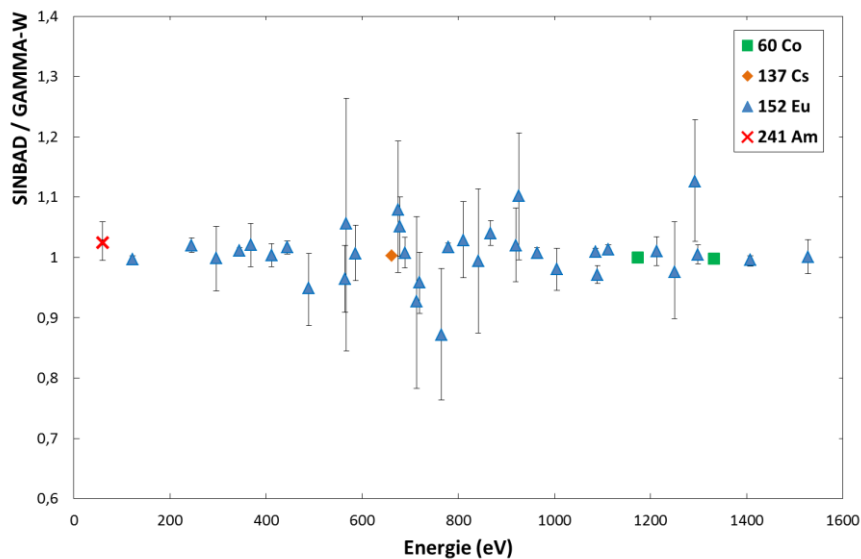


Figure 93. Rapport des aires nettes des raies gamma des quatre sources ponctuelles ( $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  et  $^{241}\text{Am}$ ) estimées avec SINBAD et avec Gamma-W.

Gamma-W et SINBAD indiquent une incertitude relative à 2 écarts-types. Les barres d'erreurs des rapports SINBAD/GAMMA-W reportés en Figure 93 sont donc données à 2 écarts-types et on constate que les résultats donnés par SINBAD sont cohérents avec ceux de Gamma-W. La Figure 94 est une capture d'écran de la représentation graphique du résultat de l'analyse, avec SINBAD, du spectre gamma passif de MEDINA, incluant les émissions des quatre sources gamma ponctuelles. On y retrouve le spectre mesuré en vert (la densité de probabilité en ordonnées représente le nombre de coups), l'estimation du bruit de fond continu (ligne continue en noir), l'estimation de la présence de raies gamma (sous forme de distributions de Dirac en rouge dont la hauteur est égale au nombre de coups associé au pic correspondant), et enfin les raies analysées (points) représentées avec les barres d'erreurs associées à un intervalle de confiance à 95 % (incertitude à  $2\sigma$ ).

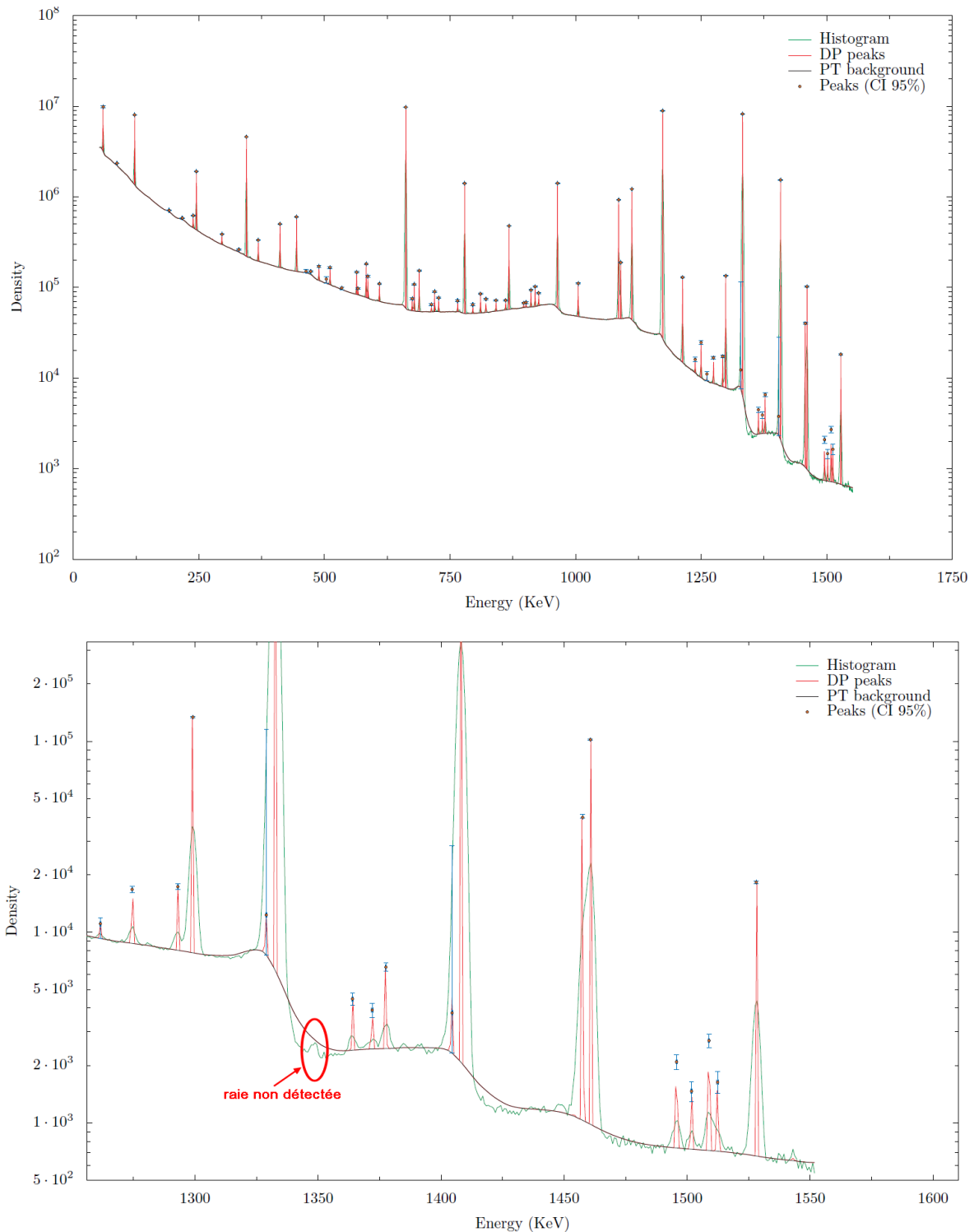


Figure 94. Représentation graphique du résultat de traitement avec SINBAD du spectre gamma passif obtenu avec les quatre sources gamma ponctuelles  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  et  $^{241}\text{Am}$  (spectre complet en haut et agrandissement en bas).

On notera une des limitations actuelles de SINBAD pour l'analyse de spectre présentant des variations rapides de fond continu (*e.g.* front Compton). En effet, comme on peut l'observer sur l'agrandissement en Figure 94, l'hypothèse de fond continu « lisse » utilisée par SINBAD ne permet pas de reproduire correctement de telles variations. Premièrement, cela peut entraîner une sous-estimation de l'aire nette de la raie gamma présente au niveau de cette variation. Toutefois, l'amplitude des raies gamma étant importante par rapport au continuum sur lequel elles sont placées, l'erreur sur l'aire nette est inférieure à 1%. D'autre part, d'éventuelles raies gamma de



faible amplitude présentent dans la zone où le continuum est mal évalué peuvent ne pas être détectées. Ce dernier point peut être observé sur l'agrandissement de la Figure 94 où l'estimation du bruit de fond continu sous la raie gamma d'énergie 1332 keV de l'isotope  $^{60}\text{Co}$  ne permet pas l'identification d'une raie gamma de faible amplitude à 1348 keV (entourée sur la Figure 94). Des améliorations, permettant de s'affranchir de cette limitation sont à l'étude au CEA-LIST.

Afin de vérifier les performances de SINBAD pour des spectres plus complexes, le spectre obtenu par irradiation neutronique pulsée d'un échantillon de NaCl, utilisé pour la validation du modèle MCNP de la cellule MEDINA dans le chapitre II, a été analysé avec SINBAD. Les aires nettes ont ensuite été comparées comme précédemment avec celles obtenues par Gamma-W (Figure 95). Les raies promptes de capture radiative des neutrons thermiques par l'isotope  $^{35}\text{Cl}$  ont été décomposées en différentes catégories :

- les raies gamma principales [AIEA07],
- les raies gamma de section efficace partielle de production ( $\sigma E_\gamma$ ) faibles [AIEA07],
- la raie gamma d'énergie 517 keV en interférence avec la raie gamma de création de paires d'énergie 511 keV,
- les raies de simple et double échappement (S.E. et D.E.).

En plus de ces raies gamma, les aires nettes des raies de capture radiative des isotopes  $^1\text{H}$  et  $^{12}\text{C}$  (bruit de fond) ont également été comparées.

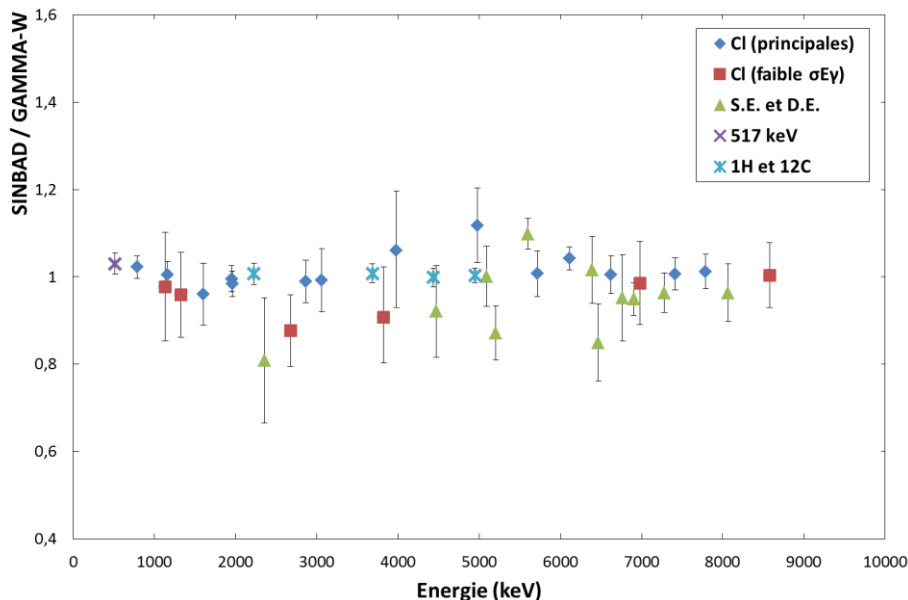


Figure 95. Rapport des aires nettes des raies gamma promptes de capture radiative de l'isotope  $^{35}\text{Cl}$  (échantillon) et des isotopes  $^1\text{H}$  et  $^{12}\text{C}$  (bruit de fond actif de la cellule MEDINA) extraites avec SINBAD et avec Gamma-W.

Comme précédemment, on retrouve globalement avec SINBAD les aires nettes données par Gamma-W, les écarts les plus importants étant observés pour les raies gamma à faible statistique de comptage. Comme indiqué au chapitre II, la résolution du détecteur ne permet pas de distinguer les raies gamma très proches en énergie (786 keV et 788 keV). Pour celles-ci, la comparaison a été faite

sur la somme des deux intensités. On pourra remarquer qu'avec les mêmes étalonnages (en énergie et en résolution), SINBAD et Gamma-W identifient, dans les deux cas, deux intensités de rapports légèrement différents mais ne correspondant pas au rapport des intensités de la référence [AIEA07], voir Tableau 33.

**Tableau 33. Rapport des intensités des raies gamma de capture radiative de l'isotope  $^{35}\text{Cl}$  de la base de donnée [AIEA07] et mesurées par Gamma-W et SINBAD.**

	<b>AIEA</b>	<b>Gamma-W</b>	<b>SINBAD</b>
<b><math>I_{\gamma}(788 \text{ keV}) / I_{\gamma}(786 \text{ keV})</math></b>	$1,585 \pm 0,015$	$0,401 \pm 0,014$	$0,497 \pm 0,007$

Le spectre d'activation neutronique pulsée obtenu dans la cellule MEDINA avec l'échantillon de NaCl comprend un grand nombre de raies gamma (captures radiatives de l'isotope  $^{35}\text{Cl}$  et du fond de la cellule). Il a donc été choisi de comparer le temps nécessaire pour analyser un tel spectre à partir des deux outils de spectrométrie gamma. Dans le cas d'une analyse raie par raie avec Gamma-W, on estime qu'un opérateur expérimenté aura besoin de quelques heures pour extraire l'ensemble des raies gamma du spectre, d'autant plus si l'on ignore la nature des émetteurs gamma. Dans le cas de SINBAD, l'ensemble du spectre est traité en une fois. Pour un spectre du type de l'échantillon de NaCl, environ 15 min sont nécessaires pour l'analyse du spectre complet, et on peut raisonnablement estimer que l'analyse d'un spectre plus complexe à grande densité de raies gamma et faible statistique de comptage prendra moins de 1 h.



## Table des figures

Figure 1. Principe de classification des déchets radioactifs [ASN13].	14
Figure 2. Représentation des projets de stockage géologique CIGEO (France) et KONRAD (Allemagne).	15
Figure 3. Schéma d'une irradiation pulsée ( $t_i$ durée d'une impulsion neutronique, T temps de répétition des impulsions) et d'une mesure en anti coïncidence avec $t_c^1$ et $t_c^2$ les temps de mesure entre les impulsions respectivement des rayonnements de capture et retardé (équation (3) équation (2)).	19
Figure 4. Composants d'une chaîne de spectrométrie gamma classique.	20
Figure 5. Spectre caractéristique d'un détecteur GeHP [Lyoussi05].	21
Figure 6. Perte d'impulsion (en rouge) dans le cas du temps mort non paralysable.	22
Figure 7. Fonctionnement du transistor reset.	22
Figure 8. Pertes d'impulsions (en rouge) dans le cas du temps mort paralysable.	22
Figure 9. Principe de détermination de l'aire nette d'un pic gamma par soustraction du bruit de fond continu sous le pic.	23
Figure 10. Prototype de la cellule d'activation neutronique pulsée de Westinghouse [Dulloo04].	27
Figure 11. Principe de mesure du signal des neutrons prompt et retardés de fission [Raoux00].	29
Figure 12. Rendements de production cumulés des produits de fission de $^{235}\text{U}$ et du $^{239}\text{Pu}$ [JEFF05].	30
Figure 13. Cellule REGAIN (CEA Cadarache) [Clamond07].	31
Figure 14. Dispositif de spectrométrie gamma à bas bruit de fond [Clamond07].	32
Figure 15. Schéma de la cellule PROMETHEE [Raoux03].	32
Figure 16. Cellule MEDINA (extérieure et intérieure) [Mauerhofer14].	33
Figure 17. Modèle MCNP de la cellule REGAIN (coupe verticale à gauche et horizontale à droite).	35
Figure 18. Modèle MCNP de la cellule MEDINA (coupe verticale à gauche et horizontale à droite).	35
Figure 19. Configurations expérimentales d'irradiation et mesure des différents échantillons placés dans MEDINA: a) $\text{Sr}(\text{NO}_3)_2$ ; b) $\text{SeO}_2$ ; c) $\text{NaCl}$ ; d) $\text{Cu}$ ; e) $\text{Ta}$ ; f) $\text{Al}$ ; g) $\text{Be}$ et h) géométrie de l'une des deux pièces cylindriques de $\text{Be}$ .	39

Figure 20. Chronogramme montrant des impulsions neutronique de $50 \mu\text{s}$ ( $t_i$ ), suivies par un temps d'attente de $20 \mu\text{s}$ ( $t_d$ ) et une fenêtre de mesure de $930 \mu\text{s}$ ( $t_c$ ). Cette séquence de durée 1 ms est répétée pendant un temps total d'irradiation de 2000 s ( $T_i$ ). .....	40
Figure 21. Zones des spectres gamma d'irradiation neutronique pulsée dans lesquelles sont indiquées les énergies des principales raies de capture pour chacun des échantillons.....	41
Figure 22. Zones du spectre du bruit de fond, mesuré cellule vide, présentant des raies gamma promptes du $^{35}\text{Cl}$ et $^{27}\text{Al}$ .....	42
Figure 23. Modèle MCNP de la cellule MEDINA dans le cas de l'irradiation de petits échantillons (coupe verticale à gauche, et horizontale à droite).....	45
Figure 24. Modèle MCNP du détecteur GeHP (vue 3D à gauche et coupe horizontale à droite).....	46
Figure 25. Allure du flux thermique induit par une irradiation neutronique pulsée correspondant au chronogramme représenté Figure 20.....	46
Figure 26. Illustration de l'approche F5 puis F8. ....	47
Figure 27. Rapport MCNP/Expérience pour différentes configurations en utilisant la méthode F5 puis F8.....	47
Figure 28. Illustration de l'approche F4 puis F8. ....	48
Figure 29. Segmentation (selon les 3 plans de l'espace) des différents échantillons pour le calcul MCNPX des taux de capture neutronique.....	51
Figure 30. Rapport des aires nettes calculées avec MCNPX et mesurées pour chaque raie gamma de capture, en utilisant les intensités de la base de données de Lone [Lone81]. ....	53
Figure 31. Rapport des aires nettes MCNPX/Mesure pour chaque raie gamma de capture, en utilisant les intensités de la base de données de Reedy & Frankle [Reedy02]. ....	54
Figure 32. Rapport des aires nettes MCNPX/Mesure pour chaque raie gamma de capture, en utilisant les intensités des raies gamma de la base de données ENSDF [Capgam13]. A gauche les raies de 0.2 à 1 MeV, à droite de 1 à 10 MeV.....	56
Figure 33. Rapport des aires nettes MCNPX/Mesure pour chaque raie gamma de capture, en utilisant les intensités des raies gamma de la base de données AIEA [AIEA07]. A gauche les raies de 0,2 à 1 MeV, à droite de 1 à 10 MeV. ....	56
Figure 34. Segmentation fine des échantillons de cuivre et de tantale (coupes horizontale et verticale, avec agrandissements). ....	57
Figure 35. Taux de capture neutronique radiative par unité de volume dans chaque segment des échantillons de tantale et de cuivre. L'origine de l'axe des abscisses représente la surface externe de l'échantillon. ....	58

Figure 36. Coefficient de transmission des gammas de capture des échantillons de tantale et de cuivre en fonction de leur profondeur d'émission (le découpage en larges sous-volumes est indiqué en pointillés).....	58
Figure 37. Segmentation de l'échantillon de tantale en quatre quarts (A. face au détecteur GeHP, B. opposé au détecteur GeHP, C. côté générateur de neutron, D. côté opposé au générateur de neutron).....	59
Figure 38. Comparaison des taux de capture neutronique radiative volumiques simulés dans l'échantillon de tantale dans le cas de trois cylindres concentriques, et une décomposition de ces mêmes cylindres en quatre secteurs par rapport au détecteur GeHP. ....	59
Figure 39. Configuration de mesure des échantillons dans la cavité de la cellule REGAIN. ....	64
Figure 40. Chronogrammes pour l'activation cyclique $t_i = 10$ ms, $T_{rep} = 50$ ms, $t_c = 30$ ms.....	65
Figure 41. Spectres gamma obtenus pour la plaquette de plutonium (en haut) et la plaquette d'uranium (en bas). La mesure passive (7000 s) avant irradiation est indiquée en rouge, celle du bruit de fond actif de la cellule REGAIN entre les impulsions (temps de comptage 4320 s) est en noir et l'activation cyclique (temps de comptage 4320 s) de la plaquette est donnée en violet.....	66
Figure 42. Configuration du spectromètre à bas bruit de fond pour la mesure des plaquettes d'uranium et de plutonium. ....	66
Figure 43. Spectres gamma obtenus pour la plaquette de plutonium (en haut) et la plaquette d'uranium (en bas). La mesure passive (900 s) avant irradiation est donnée en rouge et la première séquence de mesure de désactivation (900 s) de la plaquette est en violet.....	67
Figure 44. Principales raies gamma retardées mesurées en activation cyclique pour la plaquette de plutonium (en haut) et la plaquette d'uranium (en bas). Le bruit de fond est ici la somme du bruit de fond actif entre les impulsions et du bruit de fond passif des échantillons.....	69
Figure 45. Principales raies gamma retardées mesurées après activation cyclique pour la plaquette de plutonium (en haut) et la plaquette d'uranium (en bas), pour différent temps de mesure optimisés en fonction des périodes radioactives de chacun des isotopes. ....	69
Figure 46. Modélisation du dispositif REAGIN (coupe horizontale à gauche et vue 3D des principaux éléments à droite). ....	70
Figure 47. Efficacités de détection des rayonnements gamma émis depuis les échantillons d'uranium et plutonium, calculées avec MCNP, pour les détecteurs GeHP utilisés dans la cellule REGAIN (efficacité relative 30 %) et le spectromètre à bas bruit de fond (efficacité relative 25 %). ....	71
Figure 48. Rendements de fission cumulés des isotopes $^{239}\text{Pu}$ et $^{235}\text{U}$ de plusieurs bases de données (nombre de noyaux d'un isotope spécifique, produit directement par fission et par décroissance de noyaux précurseurs, pour 100 fissions induites par des neutrons thermiques).....	75
Figure 49. Segmentation du modèle MCNP du fût de 225 L.....	79

Figure 50. Taux de fission volumiques ( $\text{cm}^{-3}\cdot\text{s}^{-1}$ ) calculés dans chacun des sous volumes de la Figure 49, pour 10 g (en haut), et 1 g (en bas), d'isotopes $^{239}\text{Pu}$ (à gauche) et $^{235}\text{U}$ (à droite) répartis de façon homogène dans une matrice bitume ou béton (pour 10 g uniquement).....	80
Figure 51. Modèle MCNP de la cellule MEDINA avec un fût de 225 L légèrement surélevé pour être centré par rapport au générateur de neutrons, et taux de fission par unité de volume dans chaque sous segment correspondant (pour 10 g d'isotope $^{239}\text{Pu}$ dans la matrice bitume). .....	81
Figure 52. Signal gamma retardé par gramme d'isotope fissile ( $^{235}\text{U}$ ou $^{239}\text{Pu}$ ) calculé pour la matrice bitume et béton avec une émission du générateur de neutrons de $2\times 10^8 \text{ s}^{-1}$ et une irradiation pulsée de 7200 s (raies gamma à 831, 952, 973, 1312 et 1426 keV), suivie par des mesures de 6300 s, 48600 s, et 18900 s après irradiation pour les raies gamma à 1032, 1384 et 1684 keV.....	82
Figure 53. Colis maquette d'un fût bétonné de 200 L, et agrandissement d'un des cylindres de béton utilisés.....	83
Figure 54. Positionnement des sources gamma ponctuelles ( $^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ ) par rapport au détecteur GeHP.....	84
Figure 55. Spectres de bruit de fond actif de la cellule MEDINA entre les impulsions neutroniques, mesuré avec ou sans sources de $^{137}\text{Cs}$ et $^{60}\text{Co}$ placées à proximité du détecteur.....	85
Figure 56. Spectres de bruit de fond actif de la cellule MEDINA mesuré pendant 18000 s après irradiation, avec ou sans sources de $^{137}\text{Cs}$ et $^{60}\text{Co}$ placées à proximité du détecteur.....	85
Figure 57. Signal de gamma retardés pour trois distributions d'isotopes fissiles dans un colis de déchets bitumé (en périphérie, homogène et au centre).....	88
Figure 58. Signal de gamma retardés pour trois distributions d'isotopes fissiles dans un colis de déchets bétonné (en périphérie, homogène et au centre).....	89
Figure 59. Section efficace de fission des isotopes $^{239}\text{Pu}$ , $^{235}\text{U}$ et $^{238}\text{U}$ [JANIS12]. .....	89
Figure 60. Variation des taux de fission par unité de volume dans chaque sous segment du colis de déchets de 225 L (cf. Figure 49), en fonction de la proportion d'isotopes $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ . .....	90
Figure 61. Rendements de production cumulés des produits de fission thermique de l'isotope $^{235}\text{U}$ et de fission rapide de l'isotope $^{238}\text{U}$ [JEFF05]. .....	91
Figure 62. Géométrie détaillée (à gauche) et simplifiée (à droite) du cristal de germanium. La plaque de lithium de 10 cm $\times$ 10 cm sur la face avant du détecteur, faisant face au colis de déchets mesuré, est représentée pour illustrer l'orientation et la taille du cristal. ....	97
Figure 63. Modèle MCNP de la configuration initiale (INIT) de la cellule MEDINA avec la géométrie simplifiée du cristal de germanium agrandie en bas.....	98
Figure 64. Vue en coupe horizontale des 6 configurations intermédiaires (de A à F) d'amélioration du blindage du détecteur germanium, voir détails dans le texte ci-après.....	99

Figure 65. Vue en coupe verticale des 6 configurations intermédiaires (de A à F) d'amélioration du blindage du détecteur germanium, voir détails dans le texte ci-après. ....	100
Figure 66. Section efficace de capture neutronique radiative des isotopes $^1\text{H}$ (en bleu) et $^6\text{Li}$ (en rouge), et de capture par réaction (n,t) sur l'isotope $^6\text{Li}$ (en vert).....	101
Figure 67. Chronogramme d'irradiation pulsée le plus couramment utilisé dans MEDINA, allure du flux thermique du à la première impulsion pour une constante de décroissance de 2,3 ms et fenêtres temporelles d'estimation des courants de particules correspondantes, dans MCNP. ....	102
Figure 68. Courants de neutrons totaux pendant les impulsions en bleu. Les énergies inférieures à 1 keV, seuls énergies encore présentes entre les impulsions (en rouge), sont représentées sur un agrandissement en échelle log-log. ....	104
Figure 69. Courants de photons gamma totaux pendant les impulsions en bleu et entre les impulsions en rouge. ....	104
Figure 70. Rapports des courants de neutrons entre la configuration initiale et les différentes configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite/Gauche/Haut/Bas) en haut, (Avant/Total) en bas, où « Total » est le rapport des courants totaux, pendant les impulsions neutroniques. ....	106
Figure 71. Rapports des courants de neutrons entre la configuration initiale et les différentes configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite/Gauche/Haut/Bas/Avant/Total), où « Total » est le rapport des courants totaux, entre les impulsions neutroniques. ....	106
Figure 72. Rapports des courants de photons entre la configuration initiale et les différentes configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite/Gauche) sur la figure du haut, (Haut/Bas) sur celle du milieu, (Avant/Total) en bas, où « Total » est le rapport des courants totaux, pendant les impulsions neutroniques.....	107
Figure 73. Rapports des courants de photons entre la configuration initiale et les configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite/Gauche) sur la figure du haut, (Haut/Bas) sur celle du milieu, (Avant/Total) en bas, où « Total » est le rapport des courants totaux, entre les impulsions neutroniques. ....	108
Figure 74. Temps de vie des neutrons basses énergies ( $E < 1$ keV) au centre de la cellule MEDINA vide, calculé à partir de l'estimateur de flux MCNP F5 pour la configuration initiale et pour celle offrant les meilleures performances en termes de blindage.....	110
Figure 75. Taux de capture radiative volumique ( $\text{cm}^{-3}\cdot\text{s}^{-1}$ ) de l'isotope $^{35}\text{Cl}$ contenu dans un colis de déchet bétonné, calculé dans chacun des sous volumes d'un fût de 225 L (voir Figure 11 au chapitre III) simulé dans la cellule MEDINA pour la géométrie initiale et celle offrant les meilleures performances de blindage.....	111
Figure 76. Photos des configurations simples d'écrans implémentées dans MEDINA où l'on peut observer : 1) un bloc graphite de 70 cm × 20 cm × 10 cm; 2) un bloc graphite de	



50 cm × 20 cm × 10 cm; 3) un bloc graphite de 40 cm x 20 cm x 10 cm; 4) un bloc graphite de 20 cm × 20 cm × 10 cm; 5) huit ou 10 briques de plomb de 10 cm × 10 cm × 5 cm. ....112

Figure 77. Bruit de fond gamma mesuré entre les impulsions neutroniques pour la configuration initiale de la cellule MEDINA. Le spectre entier (en haut) montre les raies promptes de capture radiative induites par les neutrons thermiques et l'agrandissement de 100 keV à 1000 keV (en bas) montre des raies gamma d'activation induites par les neutrons rapides.....113

Figure 78. Sections efficaces de réactions d'activation par des neutrons de haute énergie sur les isotopes <sup>27</sup>Al, <sup>72</sup>Ge et <sup>76</sup>Ge.....114

Figure 79. Sections efficaces de capture radiative des isotopes <sup>70</sup>Ge et <sup>74</sup>Ge.....116

Figure 80. Rapport R de l'équation (21), représentatif de l'accord entre expérience et simulation pour l'efficacité du blindage gamma des configurations de la Figure 76. ....118

Figure 81. Rapport R de l'équation (21), représentatif de l'accord entre expérience et simulation pour l'efficacité du blindage neutronique des configurations de la Figure 76. ....119

Figure 82. Les deux configurations de mesure d'une cellule MEDINA modulaire (à gauche pour la mesure des rayonnements gamma d'activation, à droite pour celle des neutrons de fission). .....129

Figure 83. Allure du flux de neutrons thermiques, pendant ( $\Phi_{th}^i$ ) et après ( $\Phi_{th}$ ) une impulsion du générateur.....159

Figure 84. Section efficace d'absorption totale des neutrons du cadmium naturel (en bleu) et section efficace de capture neutronique de l'isotope <sup>197</sup>Au (en rouge).....160

Figure 85. Schéma d'une irradiation pulsée avec des neutrons thermiques résultant de l'irradiation pulsée avec les neutrons de 14 MeV du générateur.....163

Figure 86. Sections efficaces de fission des isotopes <sup>235</sup>U (en bleu) et <sup>239</sup>Pu (en rouge) [JANIS12]. ....165

Figure 87. Flux moyen de neutron (total et d'énergie inférieure à 100 meV), en fonction du temps, dans un fût de 225 L contenant une matrice bétonnée, pendant une impulsion du générateur de 10 ms et les 10 ms suivantes.....166

Figure 88. Evolution des aires nettes des rayonnements gamma prompts de capture radiative mesurés dans MEDINA en présence d'un fût de 200 L contenant une matrice bétonnée, à la suite d'une impulsion de neutrons de 250  $\mu$ s, et estimation des temps de vie moyens des neutrons associés [Mildenberger15].....167

Figure 89. Evolution des aires nettes des rayonnements gamma prompts de capture radiative mesurés dans MEDINA en présence d'un fût de 200 L contenant une matrice bétonnée, à la suite d'une impulsion de neutrons de 250  $\mu$ s, et estimation des temps de vie moyens des neutrons associés [Havenith15]. ....168

Figure 90. Comparaison entre les références [Mildenberger15], [Havenith15] et la simulation MCNP des variations (en échelle semi-log) de l'aire nette de la raie gamma prompte de capture

---

radiative de l'hydrogène suite à une impulsion du générateur de 250 $\mu$ s et des temps de vie des neutrons associés en fonction du nombre de points considérés pour l'ajustement linéaire. ....	169
Figure 91. Disposition de quatre sources gamma ponctuelles ( $^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{152}\text{Eu}$ et $^{241}\text{Am}$ ) au centre de la cellule MEDINA.....	181
Figure 92. Zone du spectre gamma passif comprenant l'ensemble des raies gamma des quatre sources ponctuelles ( $^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{152}\text{Eu}$ et $^{241}\text{Am}$ ). ....	182
Figure 93. Rapport des aires nettes des raies gamma des quatre sources ponctuelles ( $^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{152}\text{Eu}$ et $^{241}\text{Am}$ ) estimées avec SINBAD et avec Gamma-W. ....	182
Figure 94. Représentation graphique du résultat de traitement avec SINBAD du spectre gamma passif obtenu avec les quatre sources gamma ponctuelles $^{60}\text{Co}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{152}\text{Eu}$ et $^{241}\text{Am}$ (spectre complet en haut et agrandissement en bas).....	183
Figure 95. Rapport des aires nettes des raies gamma promptes de capture radiative de l'isotope $^{35}\text{Cl}$ (échantillon) et des isotopes $^1\text{H}$ et $^{12}\text{C}$ (bruit de fond actif de la cellule MEDINA) extraites avec SINBAD et avec Gamma-W. ....	184

## Liste des tableaux

Tableau 1. Répartition des différentes activités ( $\alpha$ , $\beta$ , $\gamma$ ), et des volumes de déchets radioactifs, en fonction des différentes classes [ASN13].....	14
Tableau 2. Composition du graphite et de la fibre de carbone (CFRP) employés dans MEDINA [Mauerhofer14].....	33
Tableau 3. Caractéristiques physiques (h : hauteur, l : épaisseur, L : largeur, r : rayon, $\rho$ : densité) et section efficace macroscopique de capture radiative thermique ( $\Sigma_{th}$ ) des différents échantillons. ....	38
Tableau 4. Aires nettes des principales raies du bruit de fond pour chacune des mesures.....	43
Tableau 5. Aires nettes, et incertitudes statistiques associées, des principales raies gamma de capture des échantillons. ....	44
Tableau 6. Comparaison des intensités d'émission des rayonnements gamma prompts pour chaque isotope des trois bibliothèques Reedy & Frankle (R&F) [Reedy02], ENSDF [Capgam13] et AIEA [AIEA07]. ....	55
Tableau 7. Comparaison des bases de données de Lone, Reedy and Frankle, ENSDF, et l'AIEA au travers des moyennes et écarts types des ratios MCNPX/mesure, pour l'ensemble des points mesuré, et uniquement le $^{35}\text{Cl}$ . ....	60
Tableau 8. Taux de comptages des rayonnements gamma retardés mesurés dans la cellule REGAIN. Les isotopes mesurés après irradiation sont repérés sur fond grisé. ....	68
Tableau 9. Fraction de rayonnements gamma retardés émis par fission des isotopes $^{235}\text{U}$ et $^{239}\text{Pu}$ . Les incertitudes relatives ( $\sigma_{N_V}/N_V^{\text{REGAIN}}$ ) sont dominées par la précision statistique de la mesure dans la cellule REGAIN, les incertitudes statistiques de simulation MCNPX étant inférieur à 1 %. Les isotopes mesurés après irradiation sont repérés sur fond grisé. ....	72
Tableau 10. Fraction des rayonnements gamma retardés émis par fission de isotopes $^{239}\text{Pu}$ et $^{235}\text{U}$ , calculées à partir des données tabulées et des équations (13) et (14). Les isotopes mesurés après irradiation sont repérés sur fond grisé. ....	76
Tableau 11. Rapports des rendements d'émission des rayonnements gamma retardés déterminés à partir des mesures (Tableau 9) et des données tabulées (Tableau 10). Les isotopes mesurés après irradiation sont repérés sur fond grisé.....	76
Tableau 12. Composition des matrices d'enrobé bitumineux (d = 1,30) et de béton léger (d = 1,38). Seuls les pourcentages massiques des principaux composants sont présentés ici. ....	78
Tableau 13. Limites de détection (en grammes) des isotopes $^{235}\text{U}$ et $^{239}\text{Pu}$ , pour une distribution homogène dans un fût bétonné de 200 L, une émission du générateur de neutron de $2 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$ et le chronogramme d'acquisition de la Figure 40. Les incertitudes relatives données entre parenthèses prennent en compte l'incertitude sur l'émission du générateur de neutrons et	

celle sur les rendements d'émission des rayonnements gamma retardés mesuré dans REGAIN. Les isotopes mesurés après irradiation sont repérés sur fond grisé. ....	86
Tableau 14. Limites de détection en g et en ppm (ou en %) d'éléments répartis de façon homogène ou concentré au centre d'une matrice béton contenue dans un fût de 200 L (251,73 kg), pour différents temps de mesure dans MEDINA [Havenith15]. Les toxiques chimiques retenus par l'ANDRA [ANDRA09] pour le stockage géologique sont repérés en gras.....	96
Tableau 15. Courants de neutrons ( $s^{-1}$ ) entrant par chaque face de la géométrie simplifiée du cristal de germanium et valeur totale pour la configuration actuelle de la cellule MEDINA.....	103
Tableau 16. Courants de photons ( $s^{-1}$ ) entrant par chaque face de la géométrie simplifiée du cristal de germanium et valeur totale pour la configuration actuelle de la cellule MEDINA.....	103
Tableau 17. Taux de comptage des rayonnements prompts de captures radiatives et retardés d'activation neutronique des isotopes Al et Ge (moniteurs du flux de neutrons rapides) pour la configuration originale de MEDINA (référence) et pour les configurations simples d'écran testées expérimentalement (G.1, Pb.1, GPb.1, G.2, Pb.2, GPb.2). ....	115
Tableau 18. Rapports d'embranchement relatifs entre les niveaux fondamental et métastable des isotopes du $^{75}\text{Ge}$ et $^{75m}\text{Ge}$ , $^{77}\text{Ge}$ et $^{77m}\text{Ge}$ [Erdtmann76].....	120
Tableau 19. Estimations des flux moyens de neutrons thermiques à partir de la mesure des rayonnements gamma prompts de capture radiative de l'enveloppe en fer d'un fût de 200 L (incertitude statistique entre parenthèses). ....	163
Tableau 20. Aires nettes des raies gamma d'activation par les neutrons rapides et épithermiques des isotopes du germanium.....	164
Tableau 21. Comparaisons du nombre de fissions estimé dans un fût de 225 L contenant 10 g de matière fissile répartie de manière homogène dans une matrice bétonnée à partir des valeur de flux utiles mesurés expérimentalement ou à partir de simulations MCNP. ....	164
Tableau 22. Comparaisons du nombre de fissions estimé dans un fût de 225 L contenant 10 g de matière fissile répartie de manière homogène dans une matrice bétonnée à partir des flux utiles estimés expérimentalement, en considérant ici un temps de vie moyen des neutrons de 1,5 ms, et à partir des simulations MCNP. ....	169
Tableau 23. Valeurs des limites de détection $LD_2$ déterminées à l'aide de la méthode expérimentale développée dans cette annexe avec un temps de vie des neutrons de 2,3 ms, et rapports avec celles estimées à partir des mesures dans la cellule REGAIN ( $LD_1$ ) et du taux de fission calculé avec MCNP dans le colis béton, comme exposé au chapitre III (cas sans émission parasite d'isotopes radioactifs $^{60}\text{Co}$ et $^{137}\text{Cs}$ ).....	175
Tableau 24. Valeurs des limites de détection $LD_2$ déterminées à l'aide de la méthode expérimentale développée dans cette annexe avec un temps de vie des neutrons de 1,5 ms, et rapports avec celles estimées au chapitre III, $LD_1$ (cas sans émission parasite d'isotopes radioactifs $^{60}\text{Co}$ et $^{137}\text{Cs}$ ). ....	176

- Tableau 25. Rapports des courants de neutrons d'énergie supérieure à 1 MeV entre la configuration initiale et les configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite, Gauche, Haut, Bas, Avant et Arrière), et rapport des courants totaux (Total), pendant les impulsions neutroniques. Les incertitudes relatives (statistiques des calculs MCNP) sont ici inférieures à 2 % pour la face arrière et 1 % pour les autres valeurs. ....177
- Tableau 26. Rapports des courants de neutrons d'énergie inférieure à 1 keV entre la configuration initiale et les configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite, Gauche, Haut, Bas, Avant et Arrière), et rapport des courants totaux (Total) , pendant les impulsions neutroniques. Les incertitudes relatives (statistiques des calculs MCNP) sont ici inférieures à 2 % pour la face arrière et 1 % pour les autres valeurs. ....177
- Tableau 27. Rapports des courants de neutrons d'énergie inférieure à 1 keV entre la configuration initiale et les configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite, Gauche, Haut, Bas, Avant), et rapport des courants totaux (Total), entre les impulsions neutroniques. Les incertitudes relatives (statistiques des calculs MCNP) sont ici inférieures à 2 % sauf pour la face arrière où la statistique n'est pas suffisante pour que les résultats soient pertinents. ....178
- Tableau 28. Rapports des courants de photons d'énergie 4.4 MeV (rayonnement prompt de diffusion inélastique des neutrons rapides sur l'isotope  $^{12}\text{C}$ ) entre la configuration initiale et les configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite, Gauche, Haut, Bas, Avant et Arrière), et rapport des courants totaux (Total) , pendant les impulsions neutroniques. Les incertitudes relatives (statistiques des calculs MCNP) sont mentionnées entre parenthèses. Pour les dernières configurations, la statistique pour la face arrière n'est pas suffisante pour que les résultats soient pertinents. ....178
- Tableau 29. Rapports des intégrales de courants de photons d'énergie supérieure à 50 keV entre la configuration initiale et les configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite, Gauche, Haut, Bas, Avant et Arrière), et rapport des courants totaux (Total), pendant les impulsions neutroniques. Les incertitudes relatives (statistiques des calculs MCNP) sont ici inférieures à 2 % pour la face arrière et 1 % pour les autres valeurs. ....179
- Tableau 30. Rapports des courants de photons d'énergie 2.2 MeV (rayonnement prompt de capture radiative des neutrons thermiques sur l'isotope  $^1\text{H}$ ) entre la configuration initiale et les configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite, Gauche, Haut, Bas, Avant et Arrière), et rapport des courants totaux (Total) , entre les impulsions neutroniques. Les incertitudes relatives (statistiques des calculs MCNP) sont mentionnées entre parenthèses. La statistique pour la face arrière n'est pas suffisante pour que les résultats soient pertinents. ....179
- Tableau 31. Rapports des courants de photons d'énergie 4.9 MeV (rayonnement prompt de capture radiative des neutrons thermiques sur l'isotope  $^{12}\text{C}$ ) entre la configuration initiale et les configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite, Gauche, Haut, Bas, Avant et Arrière), et rapport des courants totaux (Total), entre les impulsions neutroniques. Les incertitudes relatives (statistiques des calculs MCNP) sont mentionnées

entre parenthèses. Pour les dernières configurations, la statistique pour la face arrière n'est pas suffisante pour que les résultats soient pertinents.....180

Tableau 32. Rapports des intégrales de courants de photons d'énergie supérieure à 50 keV entre la configuration initiale et les configurations d'écrans (A, B, C, D, E, F) pour chacune des faces du cristal (Droite, Gauche, Haut, Bas, Avant et Arrière), et rapport des courants totaux (Total), entre les impulsions neutroniques. Les incertitudes relatives (statistiques des calculs MCNP) sont ici inférieures à 4 % pour la face arrière et 2 % pour les autres valeurs.....180

Tableau 33. Rapport des intensités des raies gamma de capture radiative de l'isotope  $^{35}\text{Cl}$  de la base de donnée [AIEA07] et mesurées par Gamma-W et SINBAD.....185



# Abstract

Nuclear activities produce radioactive wastes classified following their radioactive level and decay time. An accurate characterization is necessary for efficient classification and management. Medium and high level wastes containing long lived radioactive isotopes will be stored in deep geological storage for hundreds of thousands years. At the end of this period, it is essential to ensure that the wastes do not represent any risk for humans and environment, not only from radioactive point of view, but also from stable toxic chemicals. This PhD thesis concerns the characterization of toxic chemicals and nuclear material in radioactive waste, by using neutron activation analysis, in the frame of collaboration between the Nuclear Measurement Laboratory of CEA Cadarache, France, and the Institute of Nuclear Waste Management and Reactor Safety of the research center, FZJ (Forschungszentrum Jülich GmbH), Germany. The first study is about the validation of the numerical model of the neutron activation cell MEDINA (FZJ), using MCNP Monte Carlo transport code. Simulations and measurements of prompt capture gamma rays from small samples measured in MEDINA have been compared for a number of elements of interest (beryllium, aluminum, chlorine, copper, selenium, strontium, and tantalum). The comparison was performed using different nuclear databases, resulting in satisfactory agreement and validating simulation in view of following studies. Then, the feasibility of fission delayed gamma-ray measurements of  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{235}\text{U}$  in 225 L waste drums has been studied, considering bituminized or concrete matrixes representative of wastes produced in France and Germany. The delayed gamma emission yields were first determined from uranium and plutonium metallic samples measurements in REGAIN, the neutron activation cell of LMN, showing satisfactory consistency with published data. The useful delayed gamma signals of  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{235}\text{U}$ , homogeneously distributed in the 225 L matrixes, were then determined by MCNP simulations using MEDINA numerical model. Weak signals of about one hundred counts per gram of  $^{239}\text{Pu}$  or  $^{235}\text{U}$  after 7200 s irradiation were obtained. Because of the high gamma emission in the bituminized waste produced in France (about 1 TBq of  $^{137}\text{Cs}$  per drum), the use of collimator and/or shielding is mandatory to avoid electronic saturation, making fission delayed gamma rays undetectable. However, German concrete drums being of lower activity, their corresponding active background was measured in MEDINA with a concrete mock-up, leading to detection limits between 10 and 310 g of  $^{235}\text{U}$  or  $^{239}\text{Pu}$ , depending on the delayed gamma line. In order to improve these performances, the shielding of MEDINA germanium detector was optimized using MCNP calculations, resulting in gamma and neutron background reduction factors of 4 and 5, respectively. The experimental validation of the shielding efficiency was performed by implementing easy-to-build configurations in MEDINA, which confirmed the expected background reduction factors predicted by MCNP. Thanks to an optimized detector shielding, it will also be possible to use a higher neutron emission source, like a high flux neutron generator or an electron LINAC with appropriate conversion targets, in view to further reduce detection limits.

**Keywords:** Radioactive waste characterization, neutron activation analysis, high resolution gamma spectrometry, prompt radiative capture gamma rays, delayed fission gamma rays, MCNP simulation







# Résumé

Les activités nucléaires génèrent des déchets radioactifs classés selon leur niveau d'activité et la durée de vie des radioéléments présents. La garantie d'un classement et d'une gestion optimale nécessite une caractérisation précise. Les déchets de moyenne et haute activité, contenant des radioéléments à vie très longue, seront stockés en profondeur pendant plusieurs centaines de milliers d'années, à l'issue desquelles il est nécessaire de pouvoir garantir l'absence de risques pour l'homme et l'environnement, non seulement sur le plan radiologique, mais aussi en ce qui concerne des éléments stables, toxiques du point de vue chimique. Cette thèse concerne la caractérisation par activation neutronique de ces éléments toxiques, ainsi que celle des matières nucléaires présentes dans les colis. Elle a été réalisée dans le cadre d'une collaboration entre le Laboratoire de Mesures Nucléaires du CEA Cadarache, en France, et l'institut de Gestion des Déchets Radioactifs et de Sécurité des Réacteurs du centre de recherche FZJ (*Forschungszentrum Jülich*), en Allemagne. La première étude a consisté à valider le modèle numérique de la cellule d'activation neutronique MEDINA (FZJ) avec le code de transport Monte Carlo MCNP. Les rayonnements gamma prompts de capture radiative d'échantillons contenant des éléments d'intérêt (béryllium, aluminium, chlore, cuivre, sélénium, strontium et tantale) ont été mesurés et comparés aux simulations avec diverses bases de données nucléaires, permettant d'aboutir à un accord satisfaisant et validant le schéma de calcul en vue des études suivantes. Ensuite, la mesure des rayonnements gamma retardés de fissions induites sur les isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{239}\text{Pu}$  a été étudiée pour des fûts de 225 L contenant des enrobés bitumineux ou une matrice béton, représentatifs de déchets produits en France et en Allemagne. Les rendements d'émission des rayonnements gamma retardés de fission d'intérêt, cohérents avec ceux publiés dans la littérature, ont été déterminés à partir des mesures d'échantillons métalliques d'uranium et de plutonium dans la cellule d'activation neutronique REGAIN du LMN. Le signal utile a ensuite été extrapolé par simulation MCNP pour une répartition homogène d'isotopes  $^{239}\text{Pu}$  ou  $^{235}\text{U}$  dans les matrices considérées, en utilisant le modèle numérique de MEDINA. Des signaux faibles, de l'ordre de 100 coups par gramme d'isotope  $^{239}\text{Pu}$  ou  $^{235}\text{U}$ , ont été obtenus. Pour le colis d'enrobés bitumineux, le niveau d'irradiation gamma très élevé, dû à une activité en  $^{137}\text{Cs}$  de l'ordre de 1 TBq par fût, nécessiterait l'utilisation d'une collimation et/ou d'écrans pour éviter la saturation de l'électronique de mesure, rendant indétectables les rayonnements gamma retardés de fission. Les colis de déchets bétonnés produits en Allemagne présentant un niveau d'activité plus faible, il a été possible d'estimer des limites de détection allant de 10 à 310 g d'isotope fissile  $^{235}\text{U}$  ou  $^{239}\text{Pu}$ , selon la raie gamma considérée, suite à la mesure du bruit de fond actif dans MEDINA avec une matrice béton maquette. Afin d'améliorer ces performances, le blindage du détecteur germanium de MEDINA a été optimisé à l'aide de simulations MCNP, montrant la possibilité de réduire les bruits de fond gamma et neutron d'un facteur 4 et 5, respectivement. La validation expérimentale de l'efficacité du blindage a été effectuée à partir de configuration simples à implémenter dans MEDINA, confirmant les facteurs de réduction attendus. Un blindage du détecteur optimal permettrait d'améliorer les limites de détection et aussi d'utiliser une source de neutrons d'intensité supérieure, comme un générateur de neutron à haut flux ou un accélérateur linéaire d'électrons avec une cible de conversion appropriée.

**Mots-clefs:** Caractérisation des déchets radioactifs, activation neutronique, spectrométrie gamma haute résolution, rayonnements gamma prompt de capture radiative, rayonnements gamma retardés de fission, simulation MCNP