



**HAL**  
open science

# Optimisation des mesures de spectrométrie gamma pour la prospection de l'uranium

Thomas Marchais

► **To cite this version:**

Thomas Marchais. Optimisation des mesures de spectrométrie gamma pour la prospection de l'uranium. Instrumentations et Détecteurs [physics.ins-det]. Université Grenoble Alpes, 2019. Français. NNT : 2019GREAY017 . tel-02366534

**HAL Id: tel-02366534**

**<https://theses.hal.science/tel-02366534>**

Submitted on 16 Nov 2019

**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 LA COMMUNAUTE UNIVERSITE  
GRENOBLE ALPES**

Spécialité : **PHYSIQUE APPLIQUEE**

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

**Thomas MARCHAIS**

Thèse dirigée par **Bertrand PEROT, Ingénieur-Chercheur,  
CEA CADARACHE,**

codirigée par **Johann COLLOT, Professeur à l'UGA,  
LPSC Grenoble,**

et par **Cédric CARASCO, Ingénieur-Chercheur,  
CEA CADARACHE,**

préparée au sein du **Laboratoire de Mesures Nucléaires,**

dans l'**École Doctorale de PHYSIQUE de Grenoble.**

# **Optimisation des mesures de spectrométrie gamma pour la prospection de l'uranium**

Thèse soutenue publiquement le **28 mai 2019,**

devant le jury composé de :

**M. Frédéric MAYET**

Professeur à l'Université Grenoble Alpes, Président,

**M. Jean-Claude ANGELIQUE**

Professeur à l'ENSICAEN, Rapporteur,

**M. Benoît GALL**

Professeur à l'Université de Strasbourg, Rapporteur,

**M. Hervé TOUBON**

Directeur Recherche, Développement et Innovation ORANO Mining, Examineur.





# Remerciements

*Je tiens à remercier l'ensemble des personnes qui de près ou de loin ont contribué à l'accomplissement de cette thèse.*

*Je remercie **Frédéric MAYET** d'avoir accepté de présider mon jury de thèse, ainsi que **Jean-Claude ANGELIQUE** et **Benoît GALL** pour leur lecture attentive du mémoire et leur esprit critique en tant que rapporteurs.*

*Je tiens à remercier **ORANO Mining** d'avoir eu l'idée de collaborer avec le Laboratoire de Mesures Nucléaires sur un sujet complémentaire à ces deux entités. De ce fait, je remercie chaleureusement **Hervé Toubon**, pour sa sympathie et son sens du partage. Je tiens aussi à remercier **Romain Goupillou** pour avoir accepté de suivre ma thèse et pour ses remarques pertinentes pendant ces 3 années.*

*Merci à **Bertrand PEROT**, **Cédric CARASCO** du Laboratoire de Mesures Nucléaires (CEA Cadarache) et **Johann COLLOT** de l'Université Grenoble Alpes pour avoir encadré ma thèse. Ils ont su, avec patience, répondre sans exception à toutes mes questions. Leur aisance scientifique m'a permis d'avancer sans peur sur le chemin parfois semé d'embûches qu'est une thèse. Je souhaite à n'importe quel doctorant, d'être aussi bien encadré que j'ai pu l'être, tant scientifiquement qu'humainement.*

*Merci à **Fanny JALLU**, chef du Laboratoire de Mesures Nucléaires, de m'avoir permis de m'épanouir professionnellement au sein de son laboratoire. Je remercie les équipes du LMN, qui ont tous participé, sans exception, à l'aboutissement de cette thèse : **Pierre-Guy ALLINEI**, **Rodolphe ANTONI**, **Mehdi BEN MOSBAH**, **Pascal CHAUSSONNET**, **Laurent CHRISTIN**, **Bernard CORNU**, **Caroline DESPREZ**, **Daniel ECK**, **Cyrille ELEON**, **Nicolas ESTRE**, **Sébastien EVRARD**, **Sophie GRANDJEAN**, **Nicolas HUPONT**, **Marion LEDIEU**, **Joel LORIDON**, **Laurent LOUBET**, **Jean-luc MA**, **Frederic MORALES**, **Damien MOULIN**, **Guillaume OUDOT**, **Christian PASSARD**, **Emmanuel PAYAN**, **Christophe ROURE**, **Eric SIMON**, **Léonie TAMAGNO** et **David TISSEUR**. Merci aux futurs docteurs **Marc KISTLER**, **Roberto DE STEFANO**, **Vincent BOTTEAU** ainsi qu'aux docteurs **Benoît SIMONY**, **Tanguy NICOL** et **Alix SARDET** pour leurs conseils et l'entraide essentielle pendant une thèse. Je remercie aussi tous les petits stagiaires et alternants que j'ai pu croiser durant cette thèse (**Mélanie**, **Maxime**, **Manon**, **Alexis**, **Sébastien**...)*

*Je remercie l'équipe du « Hameau de Cadarache » pour les (trop) nombreuses soirées passées parmi vous. Mention spéciale à **Antoine MARIE**, **Aurélie CALAME**, **Lucas JAUBERT**, **Maeva MAULIN** (future doctorante au LMN), **Marianne DELFORT**, **Francis RIBEROLLE** et **Marine JOLY**. C'est grâce à vous, que cette période restera inoubliable.*

*Merci, **Maryon AUMONT**, d'avoir su tirer le meilleur de moi-même. Ta présence et ton soutien sont les points clefs qui m'ont permis d'accomplir cette thèse. Ton aide si précieuse, à ce moment si particulier de ma vie est un véritable cadeau.*

*Je remercie l'ensemble des membres de ma famille (plus ou moins proche, car on ne laisse personne sur le bord de la route). Plus particulièrement, mon père et ma mère qui part leur exemplarité et leur intérêt pour les sciences m'ont permis de me définir en tant qu'individu. Je ne serais jamais arrivé où j'en suis aujourd'hui sans eux (comme promis, je leur rendrai au centuple). Je remercie ma sœur et mon grand frère car on essaye toujours de copier les qualités de ses aînés. Enfin, je remercie mon frère jumeau, qui grâce à cette compétition permanente (que je gagne souvent), m'a permis de viser bien plus loin que je ne l'aurais pensé.*

*Pour finir, je tiens à remercier tous les chanteurs des années 50 à 90 (Brel, Brassens, Hallyday, Aznavour, Reggiani, Mitchell et tant d'autres) pour m'avoir permis de m'évader durant les périodes de recherches.*

*"It's a new dawn, it's a new day, it's a new life for me, and i'm feeling good" (Nina Simone, Feeling Good)*





# Table des matières

|   |           |
|---|-----------|
| GLOSSAIRE.....  | 9         |
| INTRODUCTION .....  | 11        |
| <b>CHAPITRE I : CONTEXTE ET OBJECTIFS DE LA THESE .....</b>   | <b>13</b> |
| I.1  INTRODUCTION.....  | 15        |
| I.1.1  Des géosciences aux mesures de suivi de production .....   | 15        |
| I.1.2  La phase de valorisation du minerai d'uranium.....   | 17        |
| I.1.3  Le minerai d'uranium et ses émissions radioactives .....   | 18        |
| I.1.3.1  Le minerai d'uranium.....  | 18        |
| I.1.3.2  Déséquilibre des chaînes de filiation de l'uranium .....                                       | 21        |
| I.1.4  Technologies déployées pour mesurer la teneur en uranium .....                                   | 22        |
| I.2  TAUX DE COMPTAGE TOTAL.....  | 23        |
| I.2.1  Détecteurs utilisés.....   | 23        |
| I.2.2  Comptage total : première approximation de la teneur en uranium.....                             | 25        |
| I.2.3  Méthode Thommeret.....   | 25        |
| I.3  SPECTROMETRIE GAMMA.....   | 27        |
| I.3.1  Spectrométrie gamma haute résolution .....   | 27        |
| I.3.1.1  Détecteur à semi-conducteur : cas du germanium.....  | 27        |
| I.3.1.2  Emissions gamma mesurées .....   | 28        |
| I.3.1.3  Détermination de la teneur en uranium d'un échantillon via les raies du spectre $\gamma$ ..... | 30        |
| I.3.2  Spectrométrie gamma basse résolution .....   | 31        |
| I.3.2.1  Principales différences avec la spectrométrie haute résolution .....                           | 31        |
| I.3.2.2  Mesure basées sur les raies du spectre $\gamma$ .....  | 32        |
| I.3.2.3  Analyse par bandes d'énergie.....  | 34        |
| I.4  FLUORESCENCE X.....  | 38        |
| I.4.1  Principe de la fluorescence X.....   | 38        |
| I.4.2  Analyseur à fluorescence X .....   | 38        |
| I.5  AUTRES TECHNOLOGIES.....   | 40        |
| I.5.1  Mesure par activation ou interrogation neutronique .....   | 40        |
| I.5.2  Spectrophotométrie .....   | 43        |
| I.5.3  ICP-MS.....  | 43        |
| I.5.4  Spectrométrie alpha.....   | 43        |
| I.6  CONCLUSION ET APPORT DE LA THESE .....   | 44        |
| I.6.1  Mesures réalisées à la station d'étalonnage radiométrique de Bessines (ORANO).....               | 44        |
| I.6.2  Nouvelles informations à exploiter pendant la thèse .....  | 44        |
| I.6.3  Récapitulatif des détecteurs et des méthodes utilisées .....                                     | 45        |
| <b>CHAPITRE II : NOUVELLES METHODES DE SPECTROMETRIE GAMMA HAUTE RESOLUTION .....</b>                   | <b>49</b> |
| II.1  INTRODUCTION.....   | 51        |
| II.2  GEOMETRIE DE MESURE DE REFERENCE .....  | 51        |
| II.2.1  Modélisation du détecteur Falcon et de la scène de mesure .....                                 | 52        |
| II.2.2  Coefficient d'étalonnage $CE_{1001}$ .....  | 54        |
| II.3  UTILISATION DE LA RAIE A 92 KEV .....   | 55        |
| II.3.1  Contribution principales.....   | 55        |
| II.3.2  Calcul de la teneur en uranium : $C_{mu}(92\text{ keV})$ .....                                  | 56        |
| II.3.3  Etude des paramètres d'influence.....   | 57        |

|  |  |            |
|--|--|------------|
| II.3.3.1   | Efficacité de détection à 92 keV.....  | 57         |
| II.3.3.2   | Hauteur de remplissage.....  | 57         |
| II.3.3.3   | Densité.....   | 58         |
| II.3.3.4   | Minéralogie.....   | 58         |
| II.3.3.5   | Coefficient d'étalonnage $CE_{92}$ .....   | 59         |
| II.4   | UTILISATION DE LA RAIE A 98 KEV .....  | 60         |
| II.4.1   | Contributions principales .....  | 61         |
| II.4.2   | Méthode d'auto-fluorescence X.....   | 61         |
| II.4.2.1   | La fluorescence X.....   | 62         |
| II.4.2.2   | Rendement de fluorescence.....   | 62         |
| II.4.2.3   | Effet de la densité.....   | 64         |
| II.4.2.4   | Effet de la hauteur de remplissage.....  | 64         |
| II.4.3   | Calcul de la teneur en uranium : $Cm_U(98\text{ keV})$ .....                     | 65         |
| II.4.4   | Etude des paramètres d'influence.....  | 66         |
| II.4.4.1   | Hauteur de remplissage.....  | 66         |
| II.4.4.2   | Densité.....   | 67         |
| II.4.4.3   | Minéralogie.....   | 67         |
| II.4.4.4   | Coefficient d'étalonnage $CE_{98}$ .....   | 67         |
| II.5   | EFFET D'UNE HETEROGENEITE POTENTIELLE DE L'ECHANTILLON .....                     | 69         |
| II.5.1   | Hétérogénéités simulées.....   | 69         |
| II.5.2   | Translation de la pépite .....   | 70         |
| II.5.2.1   | Translation horizontale de la pépite dans l'échantillon.....                     | 70         |
| II.5.2.2   | Translation verticale de la pépite dans l'échantillon.....                       | 71         |
| II.5.2.3   | Conclusion sur l'effet pépite.....   | 72         |
| II.6   | ETUDES EXPERIMENTALES .....  | 73         |
| II.6.1   | Mesures réalisées par ORANO .....  | 73         |
| II.6.1.1   | Echantillons et géométrie de mesure.....   | 73         |
| II.6.1.2   | Paramètres d'acquisition.....  | 74         |
| II.6.1.3   | Mesure de la teneur en uranium.....  | 74         |
| II.6.1.4   | Gain potentiel sur le temps d'acquisition et incertitude associée.....           | 76         |
| II.6.2   | Mesures réalisées par le Laboratoire de Mesures Nucléaires.....                  | 77         |
| II.6.2.1   | Optimisation de la modélisation du détecteur Falcon.....                         | 77         |
| II.6.2.2   | Description des échantillons et de la géométrie de mesure.....                   | 84         |
| II.6.2.3   | Paramètres d'acquisition et de traitement du signal.....                         | 88         |
| II.6.2.4   | Mesure de la teneur en uranium et gain en temps d'acquisition.....               | 89         |
| II.6.2.5   | Temps mort du détecteur Falcon 5000.....   | 92         |
| II.7   | INCERTITUDE TOTALE SUR LA MESURE .....   | 95         |
| II.7.1   | Incertitude sur la teneur $Cm_U(1001\text{ keV})$ .....                          | 96         |
| II.7.2   | Incertitude sur la teneur $Cm_U(92\text{ keV})$ .....                            | 97         |
| II.7.3   | Incertitude sur la teneur $Cm_U(98\text{ keV})$ .....                            | 98         |
| II.8   | CONCLUSION ET PERSPECTIVES .....   | 101        |
| <b>CHAPITRE III : NOUVELLES METHODES DE SPECTROMETRIE GAMMA BASSE RESOLUTION .....</b> |  | <b>103</b> |
| III.1  | INTRODUCTION.....  | 105        |
| III.2  | SIMULATION DE LA SONDE NAl .....   | 105        |
| III.2.1  | Efficacité de détection à 30 cm : sources utilisées et géométrie de mesure ..... | 106        |
| III.2.2  | Résultats et analyse .....   | 106        |
| III.2.2.1  | Largeur à mi-hauteur .....   | 106        |
| III.2.2.2  | Efficacité de détection expérimentale à 30 cm.....                               | 107        |
| III.2.3  | Modélisation du détecteur Nal et comparaison expérience - calcul.....            | 108        |
| III.3  | METHODE D'ANALYSE PAR BANDES D'ENERGIE.....                                      | 109        |
| III.3.1  | Simulation de la scène de mesure.....  | 109        |

|           |  |            |
|-----------|--|------------|
| III.3.2   | Comparaison expérience-calcul pour une mesure d'échantillon.....             | 110        |
| III.3.3   | Description de la méthode d'analyse par bandes d'énergie .....               | 111        |
| III.3.3.1 | Définition du système d'équations à résoudre .....                           | 113        |
| III.3.3.2 | Simplification du système d'équations .....                                  | 115        |
| III.3.4   | Etude paramétrique de sensibilité des coefficients $\alpha$ et $\beta$ ..... | 119        |
| III.3.4.1 | Auto-atténuation .....   | 119        |
| III.3.4.2 | Hauteur de remplissage .....   | 121        |
| III.3.4.3 | Minéralogie.....   | 122        |
| III.3.4.4 | Densité.....   | 123        |
| III.3.4.5 | Effet de l'hétérogénéité de l'échantillon .....                              | 124        |
| III.3.4.6 | Effet induit par la variation statistique du ratio $C_U/C_{Rn}$ .....        | 126        |
| III.4     | ETUDE EXPERIMENTALE DE LA METHODE PAR BANDES D'ENERGIE.....                  | 128        |
| III.4.1   | Sélection des 38 échantillons .....  | 128        |
| III.4.2   | Mesure de la teneur en uranium des 38 échantillons .....                     | 128        |
| III.4.3   | Optimisation de la zone uranium.....   | 130        |
| III.5     | COMPARAISON DES EMBASES UNISPEC ET OSPREY A FORT TAUX DE COMPTAGE .....      | 135        |
| III.6     | INCERTITUDE TOTALE DE LA METHODE.....  | 137        |
| III.7     | CONCLUSION ET PERSPECTIVES DE LA METHODE PAR BANDES D'ENERGIE .....          | 142        |
|           | <b>CONCLUSION GENERALE.....</b>  | <b>145</b> |
|           | <b>PERSPECTIVES.....</b>   | <b>149</b> |
|           | <b>ANNEXES .....</b>   | <b>151</b> |
| A.1       | DETECTEUR GERMANIUM HYPER-PUR (GEHP) .....                                   | 152        |
| A.2       | ANALYSE EN COMPOSANTE PRINCIPALES .....                                      | 156        |
| A.3       | RENDEMENT DE FLUORESCENCE ET EFFICACITE DE DETECTION .....                   | 158        |
| A.4       | ISOCS-LABSOCS.....   | 163        |
| A.5       | ESTIMATION DU GAIN EN TEMPS D'ACQUISITION .....                              | 164        |
| A.6       | MESURE AVEC UN ANALYSEUR A FLUORESCENCE X.....                               | 167        |
| A.7       | REGRESSION MULTILINEAIRE GREMLIN.....  | 173        |
| A.8       | SPECTRES NAI EXPERIMENTAUX ET MCNP .....                                     | 176        |
| A.9       | COEFFICIENTS CORRECTIFS K POUR LES ZONES « URANIUM 2 ET 3 ».....             | 179        |
| A.10      | COMPARAISON EXPERIENCE-CALCUL - EMBASE OSPREY .....                          | 181        |
| A.11      | NOTE D'INDUSTRIALISATION DE LA METHODE PAR BANDES D'ENERGIE .....            | 186        |
| A.12      | UTILISATION D'UN DETECTEUR 2"x2" POUR LA METHODE PAR BANDES D'ENERGIE.....   | 191        |
|           | <b>TABLES .....</b>  | <b>193</b> |
|           | TABLE DES FIGURES .....  | 193        |
|           | LISTE DES TABLEAUX .....   | 198        |
|           | <b>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES .....</b>                                     | <b>201</b> |



# Glossaire

- **CEA** : Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives
- **LMN** : Laboratoire de Mesures Nucléaires du CEA de Cadarache
- **ORANO Mining** : Anciennement AREVA Mines.
- **ppm** : partie par million, pourcentage massique exprimé en mg/kg.  
1 ppmU équivaut à 1 milligramme d'uranium dans 1 kilogramme d'échantillon.
- **tU** : tonnes d'uranium
- **\$/lb U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>** : Dollars (US) par livre d'U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>. Unité utilisée pour le cours de l'uranium.  
Comme l'U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> est composé de 84.8% d'uranium et 15.2% d'oxygène et que 1 kg ≅ 2,21 lb alors  
1 kg d'U ≅ 2,6 lb d'U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>
- **Bq** : Unité de radioactivité (Becquerel) représentant le nombre de désintégrations par seconde homogène à l'inverse de la seconde (s<sup>-1</sup>).
- **Roll-front** : type de dépôt d'uranium faisant suite à un mouvement de l'uranium d'une région oxydée vers une région réduite
- **GeHP** : Germanium hyper pur.
- **Bessines** : Ville près de Niort disposant d'une station radiométrique pour les sondes de diagraphie
- **ISOCS** : In Situ Object Counting System
- **MCNP** : Monte-Carlo N-Particle transport. Code de transport de particules basé sur la méthode Monte-Carlo et développée par le Laboratoire national de Los Alamos. Il est utilisé pour le transport couplé ou non de neutrons, photons et électrons.
- **Génie 2000** : Logiciel d'acquisition, d'affichage et d'analyse de données de spectrométrie gamma développé par CANBERRA (groupe MIRION Technologies). Il permet de réaliser différents ajustements gaussiens sur les raies présentes dans les spectres gamma afin d'en obtenir les aires nettes.
- **LTMH** : Largeur Totale à Mi-Hauteur (*FWHM : Full Width at Half Maximum*)
- **ICP-MS** : Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry
- **§** : permet l'abréviation pour les numéros de paragraphe.
- **K-edge** : Energie de liaison de l'électron situé sur la couche K d'un atome. Par exemple, le K-edge de l'uranium est de 115,6 keV. Cela signifie que pour réussir à exciter les électrons se situant sur la couche K de l'atome d'uranium et ainsi produire, par réorganisation du cortège orbitale de l'atome, des rayonnements X de transition K<sub>α1</sub> ou K<sub>α2</sub>, la particule incidente doit nécessairement posséder une énergie supérieure à 115,6 keV. Ce phénomène se traduit par une augmentation soudaine du coefficient d'absorption à cette même énergie.

- **Auto-fluorescence X de l'uranium** : Fluorescence de l'uranium où le terme source est induit par ses éléments fils (majoritairement le  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$ ). Habituellement, une source externe est utilisée pour faire fluorescer l'uranium. Néanmoins, dans le cadre de la thèse, on utilisera directement les rayonnements issus des noyaux fils de l'uranium pour caractériser la fluorescence de l'uranium à 98 keV (transition  $K_{\alpha 1}$ ) et ainsi permettre de calculer les différentes teneurs en uranium.
- **Paramètres d'acquisition pour le traitement des impulsions issues de l'électronique de comptage du détecteur Falcon 5000** :
  - **LTC mode** : si ce mode est en position ON, cela permet d'activer le circuit de rejet des empilements (un autre paramètre serait alors utilisé : PUR GARD = 1,1 par défaut, c'est-à-dire que toute impulsion arrivant dans un laps de temps inférieur à  $1,1 \times (\text{Flat Top} + \text{Rise time})$  est rejetée) et le système de correction de temps actif ;
  - **LT Trim** : ce paramètre permet d'ajuster la correction de temps mort à fort taux de comptage, avec une plage de réglage comprise entre 0 et 1 000 ;
  - **Rise Time** : temps de montée et de descente (identiques) de mise en forme trapézoïdale de l'impulsion (de 0,4 à 38  $\mu\text{s}$ ) ;
  - **Flat Top** : temps de plateau lors de la mise en forme trapézoïdale de l'impulsion (de 0 à 3  $\mu\text{s}$ ).
- **LED** : Diode électroluminescente

# Introduction

ORANO Mining a produit 10 078 tonnes d'uranium en 2017. Cette production provient de différents sites miniers tels que Mc Arthur River et Ciger Lake au Canada (mines souterraines), Katco au Kazakhstan (lixiviation in situ - § I.1.1) ou encore Somair (mines à ciel ouvert) et Cominak (mines souterraines) au Niger. En parallèle, la demande des réacteurs s'établit en 2017 à environ 74 600 tonnes d'uranium soit une augmentation de 4 % par rapport à l'année 2016 [1]. Cette augmentation est favorisée par la demande asiatique croissante à l'instar du récent EPR mis en service en 2018 en Chine. Ce pays compte d'ailleurs aujourd'hui 39 réacteurs en exploitation et 19 en construction. On note néanmoins que l'offre est actuellement supérieure à la demande. En effet, en 2017 l'offre au niveau mondial était d'environ 79 000 tonnes d'uranium (59 000 tonnes provenant de la production minière et 20 000 tonnes du recyclage des combustibles usés, de la remise sur le marché de stock d'uranium...). Cependant, selon la WNA (World Nuclear Association), le marché de l'uranium sera en croissance d'ici 2025 en raison du redémarrage des réacteurs japonais et de la demande croissante du marché chinois. Ainsi, la hausse des prix de l'uranium permettra le lancement de nouveaux projets miniers d'envergure. ORANO Mining suit donc actuellement une démarche d'optimisation de ses divers sites miniers existants et de maintien de ses différents projets pour lui permettre d'investir rapidement lorsque le marché de l'uranium le permettra.

La mesure nucléaire appliquée à la mine, de la diagraphie aux mesures de suivi de production, est un des axes qu'ORANO Mining étudie dans le cadre du maintien de ses divers projets de recherche et développement. La prospection et l'exploitation minières en uranium reposent depuis longtemps sur différents types de mesures nucléaires permettant de quantifier les ressources en uranium, analyser les échantillons issus des différentes mines et assurer à ORANO Mining un suivi continu de sa production.

Cette thèse s'inscrit dans le cadre de la collaboration, initiée en 2014 entre la Business Unit (BU) ORANO Mining et le Laboratoire de Mesures Nucléaires (LMN) du CEA de Cadarache sur la prospection et l'exploitation des mines d'uranium, ayant pour objectif d'améliorer la sensibilité et la précision des mesures radiométriques de l'uranium dans les puits de forage ou en surface sur des échantillons, camions à benne, bandes convoyeuses, etc. La thèse concerne deux nouvelles méthodes de caractérisation de la teneur en uranium par spectrométrie gamma haute et basse résolution sur des échantillons de minerai. Ces deux méthodes ont pour objectif de diminuer significativement les temps d'acquisition par rapport aux mesures réalisées actuellement par ORANO Mining, décrites dans le premier chapitre de ce manuscrit. Parmi ces mesures, on peut souligner la spectrométrie gamma haute résolution, se basant sur l'étude d'une émission gamma du  $^{234m}\text{Pa}$  à 1001 keV. Cette mesure qui est peu sensible aux variations de minéralogie et de teneur en uranium (faible auto-absorption dans l'échantillon à cette énergie), permet de caractériser la teneur en des temps de mesure de l'ordre de quelques heures pour des échantillons d'environ 300 grammes de minerai concassé. Elle est donc considérée comme une mesure de référence pour caractériser la teneur en uranium du minerai.

Afin d'étudier les deux nouvelles méthodes de caractérisation de la teneur en uranium, la méthodologie suivante a été suivie tout au long de la thèse :

- **modéliser les détecteurs** de spectrométrie gamma utilisés : semi-conducteur au germanium hyper pur (GeHP) et scintillateur à l'iodure de sodium (NaI) ;
- **rechercher de nouveaux indicateurs** présents dans les spectres gamma permettant de diminuer les temps de mesure, et des corrélations entre ces indicateurs et la teneur en uranium ;
- **étudier par simulation Monte-Carlo** (avec le code MCNP) les paramètres d'influence pouvant affecter ces indicateurs, tels que des déséquilibres potentiels des chaînes de filiation de l'uranium dont les deux méthodes visent à s'affranchir, et la variabilité des caractéristiques de l'échantillon (hauteur, densité, teneur en uranium, hétérogénéités potentielles) pour lesquelles des facteurs correctifs seront recherchés ;



- **valider expérimentalement** les méthodes développées grâce à la mesure de 75 échantillons réalisées par ORANO Mining avec un détecteur GeHP, et grâce à 38 échantillons supplémentaires mis à disposition par ORANO Mining au Laboratoire de Mesures Nucléaires, mesurés dans le cadre de cette thèse avec un détecteur GeHP, un scintillateur NaI et un analyseur à fluorescence X, dans un local dédié créé spécifiquement pour ces travaux. Cette dernière étape a aussi donné lieu au développement de programmes en langage Python permettant à l'opérateur d'analyser rapidement les différents échantillons.

La première méthode repose sur des mesures de spectrométrie gamma haute résolution avec un détecteur germanium hyper pur. L'objectif est d'exploiter deux raies gamma présentent systématiquement avec une grande intensité sur les spectres de minerai d'uranium, en vue de réduire significativement les durées de mesure, à savoir la raie à 92 keV composée d'émissions gamma du  $^{234}\text{Th}$  et de  $^{235}\text{U}$  et la raie à 98 keV composée essentiellement d'une émission X d'auto-fluorescence de l'uranium et d'une émission gamma du  $^{234\text{m}}\text{Pa}$ . Ces deux indicateurs permettront, notamment, de détecter un risque potentiel d'hétérogénéité de l'échantillon étudié. En effet, ceux-ci conduisent à des teneurs différentes en cas d'hétérogénéité, celle issue de la raie à 92 keV étant sous-estimée alors que celle de la raie à 98 keV est surestimée.

La deuxième méthode repose quant à elle sur une lecture par bandes d'énergies des spectres gamma de basse résolution obtenus avec un scintillateur NaI, permettant une caractérisation plus fine du minerai qu'un simple comptage total. Une méthodologie basée sur le nombre d'impulsions dans deux zones du spectre, l'une caractéristique de l'uranium et l'autre de ses descendants, permet de déterminer non seulement la teneur en uranium mais aussi un éventuel déséquilibre de sa chaîne de filiation, alors que le comptage total ne permet pas de connaître le déséquilibre et peut de ce fait conduire à une estimation erronée de la teneur.

# **Chapitre I :**

## *Contexte et objectifs de la thèse*



## I.1 Introduction

### I.1.1 Des géosciences aux mesures de suivi de production

La mission principale d'ORANO Mining, est d'assurer l'approvisionnement en uranium en amont du cycle du combustible. Son travail est axé sur les 5 phases majeures de la prospection de l'uranium :

- **L'exploration** consiste à découvrir de nouveaux gisements d'uranium par différentes méthodes développées par les experts miniers d'ORANO : études géologiques, photos aériennes ou satellites, mesures radiométriques aériennes, mesures de la radioactivité des sols (diagraphie), mesures sur échantillons ou encore chimie des sols et des eaux.
- **La phase projet** est dédiée à l'étude de la rentabilité de la mine, de sa viabilité technique (méthode d'extraction utilisée, traitement du minerai). Cette phase est constituée d'essais en laboratoire qui peuvent conduire à des essais pilotes sur site. Durant cette phase, l'aspect environnemental est aussi abordé.
- **L'extraction** du minerai d'uranium se fait sur des mines à ciel ouvert ou dans des galeries souterraines. Une technique de récupération in situ (ISR pour « *in situ recovery* ») est aussi utilisée dans les gisements (Figure 1). Elle consiste à envoyer une solution lixivante (acide ou basique selon des caractéristiques chimiques et physiques des couches entourant le minerai d'uranium) par des puits injecteurs afin de dissoudre l'uranium directement dans le sol pour ensuite la récupérer par pompage par des puits de récupération. Cette méthode est principalement utilisée dans des gisements de faible teneur situés dans des régions sableuses encadrées par de l'argile (voir § I.1.3.2), comme au Kazakhstan.

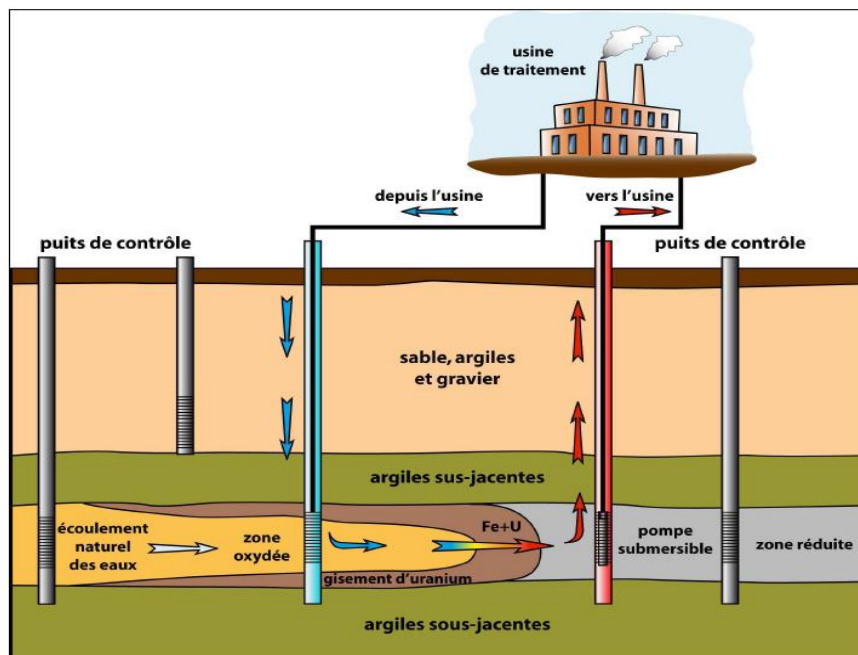
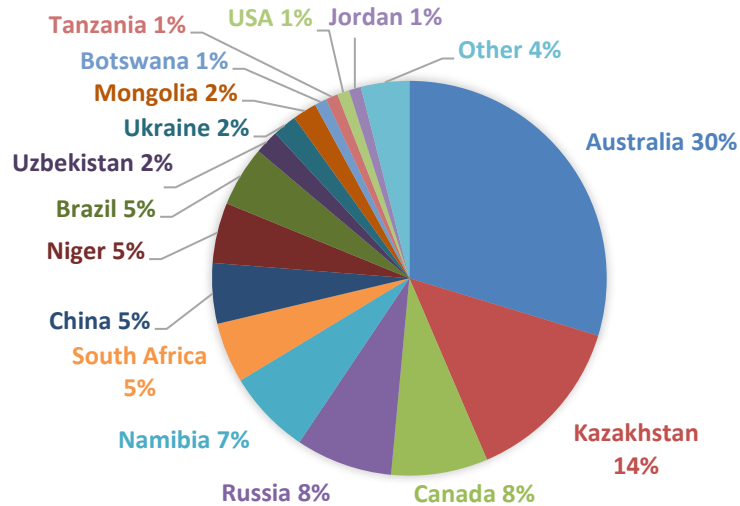


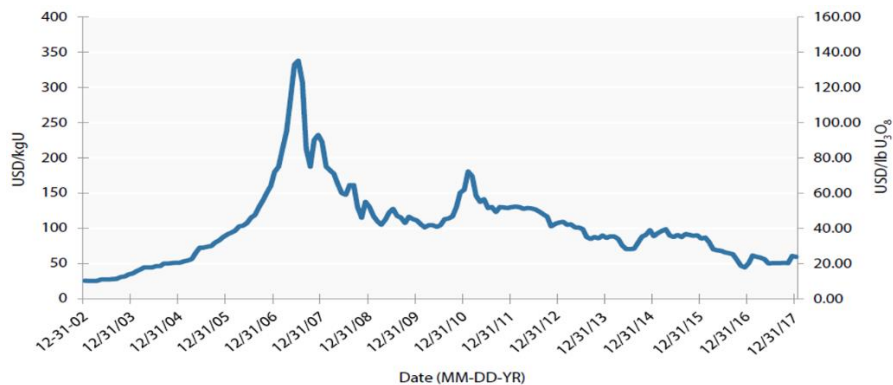
Figure 1 : Principe des roll-fronts

L'uranium se trouve partout dans la croûte terrestre (6 à 7 millions de tonnes, avec en moyenne 3 g/tonne = 3 ppm) mais seulement quelques sites uranifères sont intéressants en termes de coût total d'extraction et il convient de définir les réserves d'uranium au regard de ce coût. Le graphique suivant représente les ressources d'uranium déterminées à l'échelle mondiale au 1<sup>er</sup> janvier 2017 pour un prix d'extraction inférieur à 130 \$/kg d'uranium, soit 50 \$/lb U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> (1 kg d'uranium  $\cong$  2,6 lb d'U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>), ce qui représente un total d'environ 6 millions de tonnes d'uranium [2].



**Figure 2 : Ressource d'uranium déterminées à l'échelle mondiale au 1er janvier 2017 pour un prix inférieur à 130 \$/kg d'uranium [2]**

Il est à noter que le dernier rapport d'ensemble sur la technologie nucléaire de l'AIEA de 2018 expose un prix moyen au comptant de l'uranium d'environ 50 \$/kg d'U (soit 24 \$/lb  $U_3O_8$ ) en 2017 [3]. Les fluctuations du cours de l'uranium sont représentées dans le graphique suivant entre 2012 et 2017.



**Figure 3 : Cours de l'uranium entre 2012 et 2018 (en \$/kg d'U ou \$/lb  $U_3O_8$ ) [3]**

En 2016, les productions mondiales d'uranium étaient majoritairement réalisées au Kazakhstan (24 700 tU - 40 %), au Canada (14 000 tU - 22 %), en Australie (5 900 tU - 8.9 %), au Niger (3 500 tU – 6 %), en Namibie (3 500 tU – 6 %) et en Russie (3 000 tU – 5 %). On note qu'ORANO Mining est situé dans la majorité de ces pays producteurs, que cela soit en phase d'exploration (bassin d'Athabasca au Canada, province de Dornogovi et Sukhbaatar en Mongolie, Somaïr et extension du gisement du Grand Artois au Niger ou South Tortkuduk au Kazakhstan) ou en phase d'extraction (2164 tU au Niger, 4003 tU au Kazakhstan et 4570 tU au Canada). La Figure 4 représente une photographie de la mine à ciel ouvert de Somaïr au Niger.



**Figure 4 : Mine à ciel ouvert de Somaïr, Niger © Maurice Ascani/Orano [4]**

- Une fois l'extraction du minerai réalisée (dans le cas d'une mine souterraine ou à ciel ouvert), celui-ci subit différents types de **traitements** mécaniques et chimiques abordés dans la partie suivante : concassage, broyage, lixiviation, séparation solide-liquide, extraction par solvant ou échange d'ions, filtration, précipitation et séchage. Ces méthodes de valorisation du minerai sont directement réalisées sur site afin d'obtenir un concentré de 80 % d'uranium aussi appelé « *Yellow cake* ». Cette appellation tire son origine de la couleur jaune du concentré d'uranium qui était produit lors des premières méthodes de traitement ( $\text{Na}_2\text{U}_2\text{O}_7$ ). Aujourd'hui, on lui préfère l'octaoxyde de triuranium ( $\text{U}_3\text{O}_8$ ) de couleur vert-noir.
- La dernière étape, lorsque la mine est complètement vidée de son uranium ou que l'uranium restant est trop coûteux à extraire, consiste à **réaménager le site** et à le revégétaliser. Chaque site est sous surveillance radiologique et environnementale pendant une période d'au moins 10 ans.

En 2016, ORANO a ainsi produit 11 185 tonnes d'uranium soit 15 % du marché mondial. D'après l'AIEA, la puissance nucléaire mondiale installée devrait croître entre 7 % et 82 % d'ici 2035 ce qui induira une croissance des besoins mondiaux en uranium entre 72 000 tonnes à 122 000 tonnes d'uranium d'ici 2035.

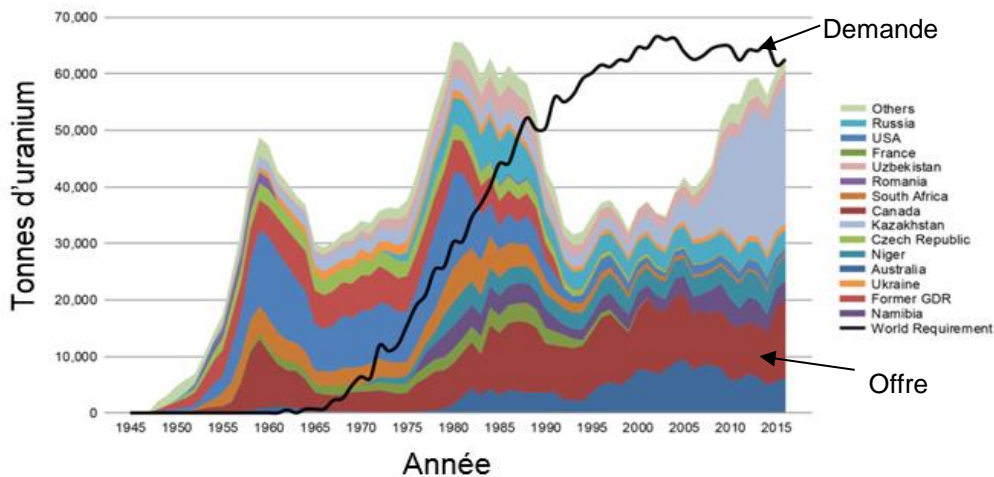


Figure 5 : Evolution des besoins mondiaux en uranium de 1945 à 2015 [2]

Afin de répondre à la demande croissante en uranium, les experts miniers, en collaboration avec des instituts de recherche tels que le CEA, mettent au point de nouvelles méthodes de mesure de la concentration en uranium d'un minerai.

### 1.1.2 La phase de valorisation du minerai d'uranium

A la suite de l'extraction du minerai celui-ci est traité afin d'obtenir un concentré d'uranium ( $\text{U}_3\text{O}_8$ ) communément appelé « *yellow cake* ». Cette phase de traitement est divisée en plusieurs parties :

- **concassage-broyage** : le minerai est broyé jusqu'à obtenir un sable fin (dans les cas des mines à ciels ouverts ou souterraines).
- **lixiviation** : étape consistant à traiter chimiquement le minerai afin de séparer l'uranium des autres éléments présents. Cette lixiviation peut être réalisée avec une solution acide ou carbonatée en cuves (traitement dynamique), directement dans les sols (ISR) ou en « tas » (traitement statique). Dans ce dernier cas, le minerai est très faiblement uranifère (< 1 000 ppm<sub>U</sub>) et est broyé très finement puis stocké sous forme de « tas ». Une solution lixiviante est ensuite pulvérisée sur les tas et le jus enrichi en uranium traversant les tas est pompé et acheminé en queue d'usine pour purification et séchage. Les temps de lixiviation en cuve varient de quelques heures à une journée entière (selon le minerai) alors que lors de la lixiviation en tas, l'arrosage s'effectue environ pendant 3 mois.

- **purification** : la solution lixiviante concentrée en uranium, obtenue par lixiviation en cuve, sur tas ou in-situ, est ensuite envoyée en queue d'usine pour être purifiée par extraction avec des solvants. Le solvant fixe et se charge en uranium puis est séparé par décantation. L'uranium est ensuite précipité pour être filtré. Une autre méthode de purification repose sur des résines échangeuses d'ions.
- **séchage et exportation** : le précipité d'uranium est séché et le « *yellow cake* » est ensuite enfûté puis envoyé vers une usine de conversion.

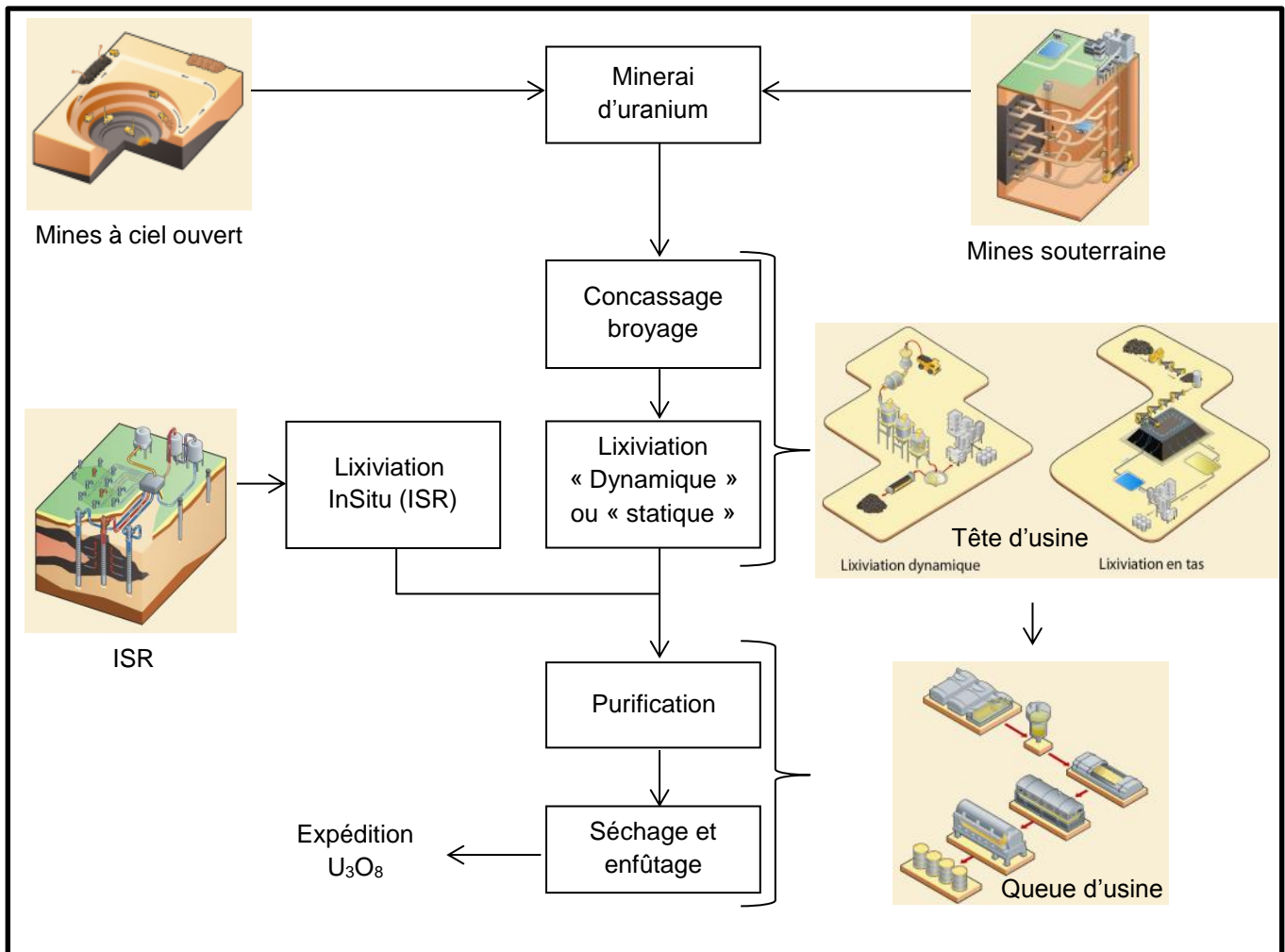


Figure 6 : Phase de valorisation du minerai d'uranium

## I.1.3 Le minerai d'uranium et ses émissions radioactives

### I.1.3.1 Le minerai d'uranium

Plus de 300 modes de cristallisation sont connus pour l'uranium ce qui rend la phase de valorisation du minerai difficile. Le plus connu d'entre eux est l'Uraninite (également appelé pechblende – voir Figure 7). Les formes d'oxyde d'uranium les plus présents dans la nature sont l'UO<sub>2</sub> (oxyde uraneux) et l'U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>, de forme solide et très peu solubles dans l'eau. En raison de leur stabilité, ces deux oxydes sont souvent utilisés pour entreposer ou stocker l'uranium. L'uranium peut néanmoins être associé, par exemple, à l'azote (nitrure d'uranium UN) ou le carbone (carbure d'uranium UC). L'uranium ne représente qu'un risque faible pour l'homme en contamination externe en raison de sa faible émission de rayonnements gamma. Néanmoins, la contamination interne et plus particulièrement l'inhalation de poussière contaminée peut être dangereuse pour l'homme (évaporation radon provenant du minerai – voir § I.1.3.2).





**Figure 7 : Photographies d'une Uraninite [5]**

L'uranium naturel est composé de trois isotopes :  $^{238}\text{U}$  (99.275 % -  $T_{1/2} = 4.468 \times 10^9$  ans ),  $^{235}\text{U}$  (0.72 % -  $T_{1/2} = 7.038 \times 10^8$  ans ) et  $^{234}\text{U}$  (0.005 % -  $T_{1/2} = 2.455 \times 10^5$  ans) [6].

Les principales émissions d'un minerai d'uranium proviennent du  $^{40}\text{K}$  et des chaînes de désintégration de l' $^{238}\text{U}$ , de l' $^{235}\text{U}$  et du  $^{232}\text{Th}$ . Comme nous le verrons plus tard, les méthodes développées pour mesurer les teneurs en uranium dépendent du type d'émission provenant de ces 4 chaînes radioactives (alpha, bêta, X, gamma, neutron, cette dernière émission étant négligeable par rapport aux autres).

L' $^{238}\text{U}$  est le noyau père d'une large filiation par décroissance radioactive se ponctuant par un élément stable : le  $^{206}\text{Pb}$ . L' $^{235}\text{U}$  est le père d'une autre famille radioactive se ponctuant par un autre élément stable : le  $^{207}\text{Pb}$ . Ces deux familles, émettrices  $\alpha$ ,  $\beta$ , X et  $\gamma$  sont représentées sur la Figure 8 ainsi que celle du  $^{232}\text{Th}$  qui se termine par un autre isotope stable du plomb : le  $^{208}\text{Pb}$ . Ces trois chaînes associées à la décroissance du  $^{40}\text{K}$ , représentent la quasi-totalité de l'activité naturelle du minerai d'uranium.

Il est à noter que les chaînes de filiation peuvent être soumises à d'éventuels déséquilibres radioactifs provenant parfois d'aléas géochimiques (phénomènes de roll-front – voir §1.1.3.2 ) ou de traitements physico-chimiques sur le minerai (voir §1.1.2) . En effet, l'uranium est un élément mobile dans le minerai et sa mobilité est influencée par les conditions chimiques du milieu. Le principal déséquilibre considéré lors de la prospection minière est le déséquilibre entre l'uranium et le radium, noté U/Ra. Notons que 95 % des émissions gamma issues des chaînes de filiation de l'uranium proviennent du  $^{214}\text{Pb}$  et du  $^{214}\text{Bi}$ , la mesure indirecte de la teneur en uranium par ces deux nucléides peut donc parfois être erronée sans connaissance du déséquilibre entre le haut de chaîne et le bas de chaîne de filiation de l' $^{238}\text{U}$ . On note que le déséquilibre U/Ra est mesurable par spectrométrie gamma haute résolution. Des mesures menées par ORANO Mining avec un détecteur GeHP [7], ont permis de caractériser le déséquilibre U/Ra d'échantillons provenant du Kazakhstan (mine d'uranium de Tortkuduk).

**Remarque :** On utilisera dans ce manuscrit la notation U/Ra pour décrire un déséquilibre entre l'uranium et le radium par simplification didactique. Il décrit en réalité le ratio des activités massiques des deux nucléides en présence, c'est-à-dire  $A_m(^{238}\text{U})/A_m(^{226}\text{Ra})$ .



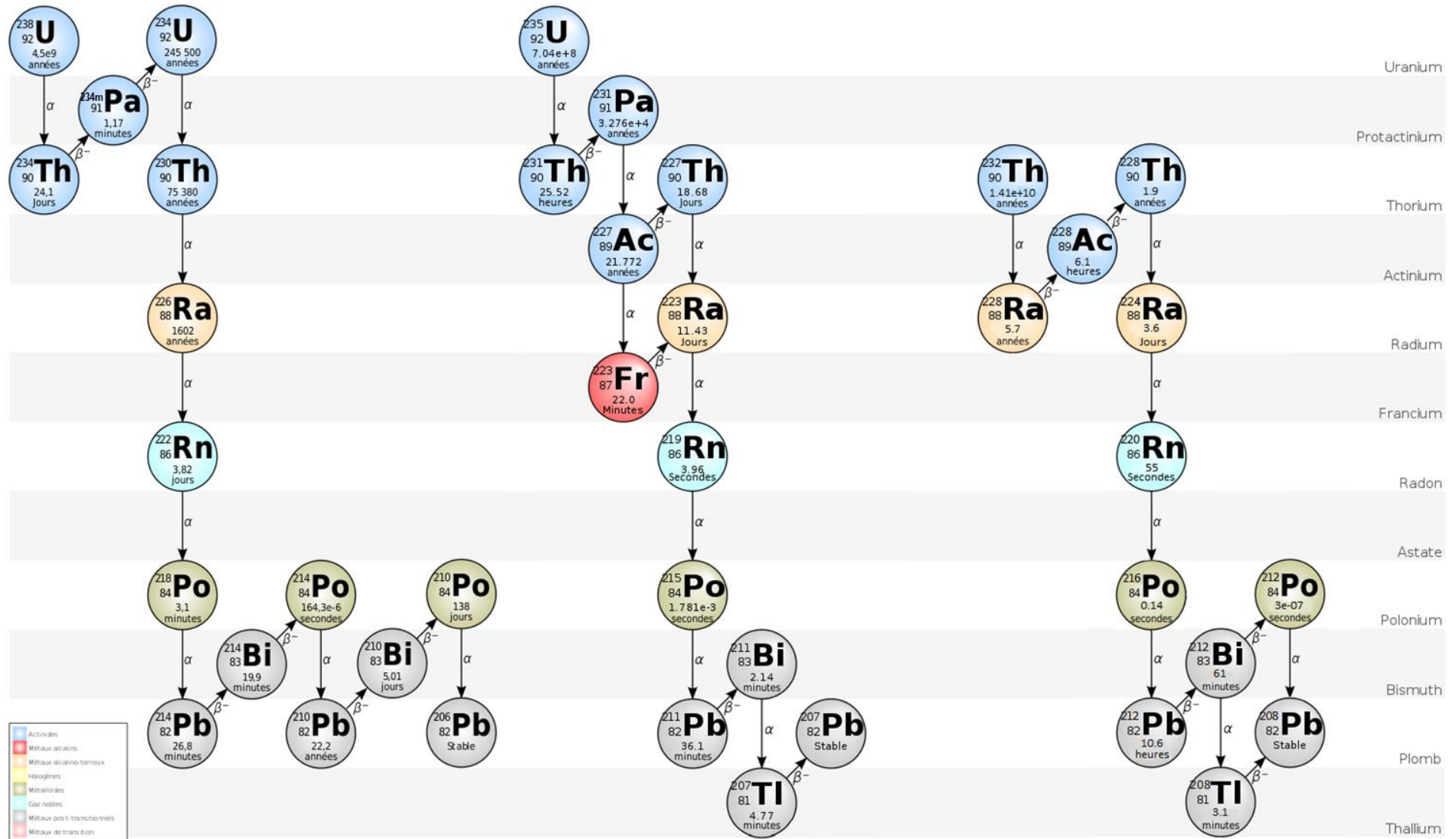


Figure 8 : Chaînes de filiation de  $^{238}\text{U}$ , de  $^{235}\text{U}$  et du  $^{232}\text{Th}$  ainsi que les périodes radioactives des nucléides [8]

### 1.1.3.2 *Déséquilibre des chaînes de filiation de l'uranium*

Ce paragraphe aborde les cas de déséquilibres radioactifs les plus connus : l'évaporation radon et les caractéristiques physico-chimiques des éléments fils de l'uranium dans les gisements de type roll-front.

- L'évaporation radon

Le radon est un gaz noble, de numéro atomique 86, très volatil. Trois isotopes de celui-ci sont situés dans les chaînes de filiation de l' $^{238}\text{U}$  ( $^{222}\text{Rn}$ ), de l' $^{235}\text{U}$  ( $^{219}\text{Rn}$ ) et du  $^{232}\text{Th}$  ( $^{220}\text{Rn}$ ). Il est présent partout dans l'atmosphère suite à son évaporation des sols et représente un enjeu sanitaire majeur car tous ses isotopes, pouvant être inhalés, sont radioactifs.

Le phénomène d'évaporation du radon est aussi un enjeu majeur dans la prospection minière. En effet, dans le cas où celui-ci s'échappe du minerai naturellement ou pendant les étapes de traitement, un déséquilibre peut se produire et ainsi « casser » les différentes chaînes de filiation en deux parties. Dans ce cas, le nombre de rayonnements gamma émis par la fin de chaîne de filiation de l' $^{238}\text{U}$  (majoritairement par le  $^{214}\text{Bi}$  et  $^{214}\text{Pb}$ ) n'est plus seulement corrélé avec la teneur en uranium de l'échantillon mais aussi avec le taux d'évaporation du radon. Il est donc nécessaire de fermer hermétiquement l'échantillon dans un conteneur le mieux adapté aux dimensions de celui-ci. Par exemple, lors de l'estimation de l'activité du  $^{226}\text{Ra}$  grâce aux différentes raies du  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$  [9], un temps d'attente est nécessaire afin de remettre l'échantillon à l'équilibre séculaire. Communément, ce temps est de l'ordre d'un mois, soit environ 10 fois la période radioactive du  $^{222}\text{Rn}$ . On note que les périodes radioactives du  $^{219}\text{Rn}$  (3.96 secondes) et du  $^{220}\text{Rn}$  (55 secondes) sont courtes par rapport au  $^{222}\text{Rn}$  (3.82 jours) et peuvent ainsi être négligées dans le temps d'attente de la remise à l'équilibre des différentes chaînes de filiation.

- Déséquilibre induit par le caractère physico-chimique des éléments fils. Cas du gisement de type roll-front.

Un autre phénomène potentiel de déséquilibre des chaînes de filiation de l'uranium provient du caractère radioactif de ces chaînes et des propriétés physico-chimiques des différents éléments fils de l'uranium (mobilité, solubilité...) [10].

Quatre processus sont à l'origine du déséquilibre radioactif des chaînes de filiation de l'uranium dans les sols. Chacun d'entre eux intervient à l'interface eau-roche du milieu :

- **recul  $\alpha$**  : lors des différentes désintégrations  $\alpha$  des chaînes de filiation, l'élément fils subit un déplacement de l'ordre de la dizaine de nanomètres suivant le type de nucléides associés. De plus, la particule  $\alpha$  éjectée pendant ce processus peut endommager le réseau cristallin ce qui rend l'élément fils encore plus mobile. Ce phénomène permet donc le passage en solution d'éléments insolubles.
- **lessivage** : l'uranium naturel présente deux degrés d'oxydation : +VI et +IV. A l'état +VI, l'uranium est soluble et mobile alors qu'à l'état +IV il a tendance à précipiter. Ce phénomène est à l'origine des gisements de types roll-front. Lors de l'infiltration d'eau oxydante dans les sols, l'uranium a tendance à être mobile sous son état de valence +VI. Cette mobilité lui permet de suivre un chemin précis situé entre deux couches imperméables constituées le plus communément d'argile ou de boues. Lorsque cette eau entre en contact avec un milieu réducteur (milieu carboné : plantes, minéraux sulfurés), elle se réduit et l'uranium dissout précipite à cause de sa solubilité plus petite dans ces conditions (état de valence +IV). Dès lors, un dépôt d'uranium est créé (gisement de type roll-front) et suit précisément les fronts d'oxydo-réduction présents dans la roche. Pendant tout son parcours, l'uranium se désintègre en différents éléments fils qui sont plus ou moins solubles dans l'eau ce qui aura pour conséquence la création ponctuelle d'un déséquilibre au sein des chaînes de filiation de l'uranium. Pour exemple, les isotopes du radium ou du radon sont solubles dans l'eau alors que les isotopes du thorium et du protactinium sont insolubles. Néanmoins, certains éléments insolubles peuvent être mis en mouvement dans l'eau en raison du recul  $\alpha$ .

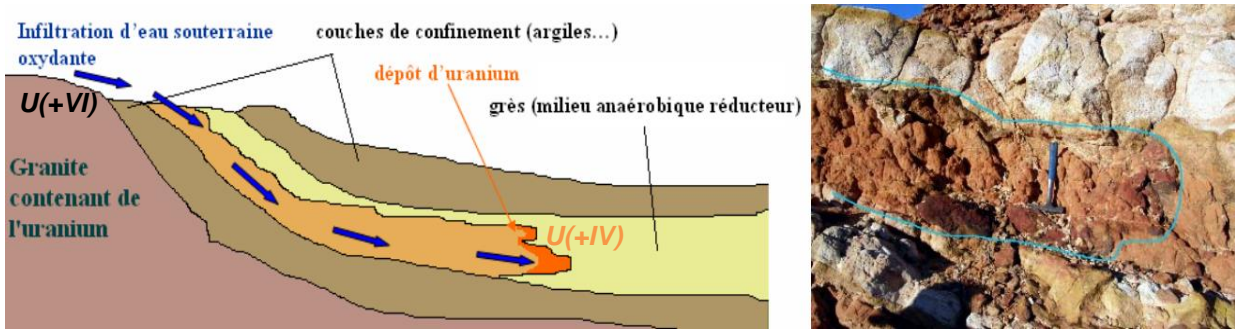


Figure 9 : Schéma explicatif d'un gisement de type roll-front et photographie d'un gisement type [11]

- **adsorption** : dans ce processus, un élément chimique peut être fixé sur une surface solide, ce qui a tendance à retarder l'avancement des nucléides dans l'eau et ainsi créer un déséquilibre dans les chaînes de filiation. On note que ce phénomène est valable pour tous les éléments de la chaîne excepté le radon. Ce phénomène est réversible, on parle dès lors de **désorption**.

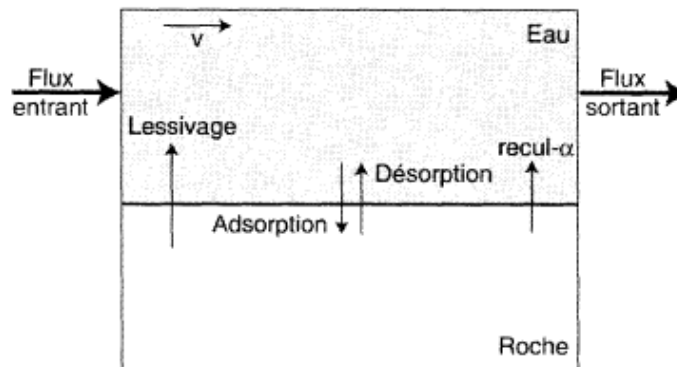


Figure 10 : Schéma explicatif du lessivage, de l'adsorption - désorption et du recul  $\alpha$  [12]

### 1.1.4 Technologies déployées pour mesurer la teneur en uranium

Toutes les émissions  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $X$  et  $\gamma$ , des différentes chaînes de décroissances sont des indicateurs des isotopes présents dans un minerai. Les méthodes développées pour mesurer la teneur en uranium reposent principalement sur ces émissions et sur les propriétés physicochimiques de l'uranium :

- spectrométrie  $\gamma$  basse (scintillateur de type NaI) et haute résolution (semi-conducteur au germanium hyper pur),
- fluorescence  $X$ ,
- taux de comptage total ( $\beta$  et  $\gamma$ ),
- ratio  $\beta/\gamma$  (aussi appelé méthode Thommeret),
- mesures par interrogation neutronique.

A ces méthodes peuvent se rajouter la spectrophotométrie ou la spectrométrie  $\alpha$  qui sont décrites à la fin de ce chapitre. Une technologie primera sur une autre suivant le type d'application, le temps de mesure, la précision recherchée ou les moyens financiers déployés. Notons par exemple que la spectrophotométrie sera préférée lors de mesures en ligne sur tuyauterie alors que l'on utilisera des détecteurs  $\gamma$  de faible résolution (type scintillateurs NaI ou LaBr<sub>3</sub>) pour des bandes convoyeuses, des mesures aéroportées (temps de comptage faibles) ou des estimations par diagraphie gamma (détecteur robuste). Les détecteurs de spectrométrie  $\gamma$  haute résolution de type germanium hyper pur (détecteurs GeHP) sont quant à eux utilisés dans le cas de mesures précises sur site ou en laboratoire (étude des déséquilibres des chaînes de filiation) alors que des analyseurs à fluorescence  $X$  sont utilisés sur site afin de permettre une mesure rapide des sols et échantillons (sur seulement quelques millimètres de profondeur). Les parties suivantes

abordent les différentes techniques décrites dans le tableau suivant : développement technologique et industriel, avantages et inconvénients.

**Tableau 1 : Technologies employées pour la prospection minière**

| Technologies                             | Détecteurs utilisés  | Rayonnements détectés   |
|--|--|---|
| Spectrométrie $\gamma$ haute résolution  | Semi-conducteur Germanium (GeHP)                                     | $\gamma$ et X des chaînes de $^{238}\text{U}$ , de $^{235}\text{U}$ , du $^{232}\text{Th}$ et $^{40}\text{K}$ |
| Spectrométrie $\gamma$ basse résolution  | Scintillateur inorganique (NaI, LaBr <sub>3</sub> )                  | $\gamma$ et X des chaînes de $^{238}\text{U}$ , de $^{235}\text{U}$ , du $^{232}\text{Th}$ et $^{40}\text{K}$ |
| Fluorescence XL                          | Analyseur à fluorescence X   | Raies X <sub>L</sub> à basse énergie 0 à 30 keV   |
| Taux de comptage total                   | Scintillateur inorganique (NaI, LaBr <sub>3</sub> ) ou Geiger-Müller | $\gamma$ , $\beta$ , $\alpha$ des différentes chaînes de filiation  |
| Ratio $\beta/\gamma$ (méthode Thommeret) | Geiger-Müller  | Taux de comptage total ( $\gamma+\beta$ )<br>Taux de comptage total $\gamma$                                  |
| Interrogation Neutronique active         | $^3\text{He}$  | Mesure des neutrons prompts de fission de $^{235}\text{U}$  |
| Spectrophotométrie                       | Spectrophotomètre  | U(VI) et U(IV) (valence de l'uranium) et teneur en uranium  |
| Spectrométrie $\alpha$                   | Spectromètre $\alpha$  | $^{238}\text{U}$ , $^{234}\text{U}$ , $^{235}\text{U}$  |

## I.2 Taux de comptage total

La méthode décrite dans ce paragraphe consiste à mesurer toutes les émissions induites par le minerai afin de déterminer sa teneur en uranium. Les détecteurs utilisés dans ce type de mesures sont des détecteurs solides à scintillation (NaI ou LaBr<sub>3</sub>) ou des détecteurs gazeux de type Geiger Müller.

### I.2.1 Détecteurs utilisés

#### - Scintillateurs inorganiques

On distingue deux catégories de scintillateurs : les organiques et les inorganiques. Les scintillateurs organiques sont caractérisés par un numéro atomique effectif faible (carbone, hydrogène) ce qui favorise les diffusions Compton alors que le dépôt complet d'énergie par effet photoélectrique est négligeable. Les scintillateurs inorganiques ayant un numéro atomique effectif élevé (NaI, LaBr<sub>3</sub>, BGO...) favorisent au contraire cet effet et permettent la spectrométrie des rayonnements gamma (voir § I.3.2).

En taux de comptage total, on détecte seulement si une particule a traversé le détecteur sans se soucier de son énergie et un scintillateur NaI (iodure de sodium) est préféré à un scintillateur LaBr<sub>3</sub> (bromure de lanthane) car il est nettement moins coûteux. Le principe du détecteur à scintillation est explicité dans le graphique suivant. Il est composé d'un cristal scintillateur (NaI, LaBr<sub>3</sub>) qui émet de la lumière à la suite d'un dépôt d'énergie d'un rayonnement  $\gamma$ , X ou  $\beta$ , suivi d'un photomultiplicateur (PM) qui permet de convertir ce signal lumineux en impulsion électrique au niveau d'une photocathode puis de l'amplifier dans un réseau de dynodes, le signal amplifié étant récupéré au niveau de l'anode. Associé à une électronique rapide, le temps de traitement d'une impulsion pour ce type de détecteur est court, inférieur à la microseconde, ce qui permet d'enregistrer en théorie jusqu'à plusieurs millions de coups par seconde. En pratique, les taux de comptages sont plutôt de l'ordre de la centaine de millier de coups par seconde.

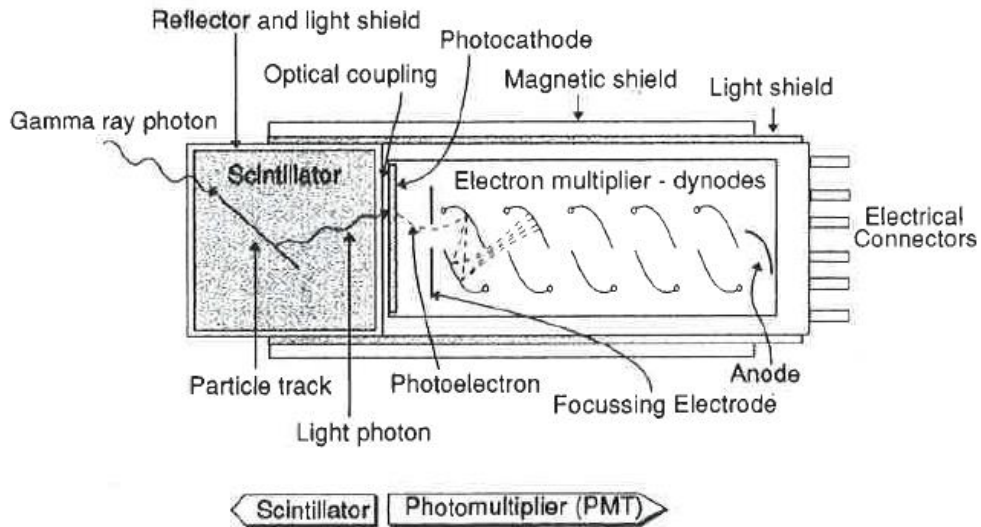


Figure 11 : Schéma explicatif d'un scintillateur inorganique [13]

- Geiger-Müller

Le détecteur à gaz Geiger-Müller est composé d'un tube rempli d'un gaz, le plus communément du néon, de l'argon, de l'hélium ou du krypton, qui n'est pas conducteur d'électricité. Une anode est placée au centre du tube (un fil conducteur) et la cathode représente l'extérieur du tube. Une différence de potentiel est introduite entre la cathode et l'anode (environ 1000 volts) et quand une particule chargée ( $\beta$  ou  $\alpha$ ) interagit avec ce gaz, elle l'ionise (création d'électrons et d'ions positifs), les ions et électrons étant alors collectés par la cathode et l'anode sous l'effet du champ électrique. Notons qu'un gamma ou un rayon X ionisera indirectement le gaz en interagissant avec les parois du compteur d'où sont éjectés les électrons par effet photoélectrique, effet Compton ou création de paires. De plus, lorsque la tension est suffisamment importante, les électrons créés peuvent ioniser d'autres molécules de gaz sur leur parcours et entraîner ainsi une « avalanche » qui permet l'amplification du signal (régime Geiger-Müller). Notons de plus qu'une partie du signal peut être causé par les rayonnements gammas qui viennent interagir avec les parois du tube (électrons éjectés de la paroi vers le gaz). On note que le compteur Geiger-Muller ne permet pas de remonter à l'énergie du rayonnement incident et que le temps mort de ce type de détecteur (temps entre deux rayonnements capables d'être détectés) est de l'ordre de la centaine de microsecondes. De ce fait, ces détecteurs seront principalement utilisés en taux de comptage total pour mesurer de faible teneur en uranium, ou en simple indicateur de radioactivité pour les inspecteurs miniers quand les taux de comptage ne sont pas trop élevés.

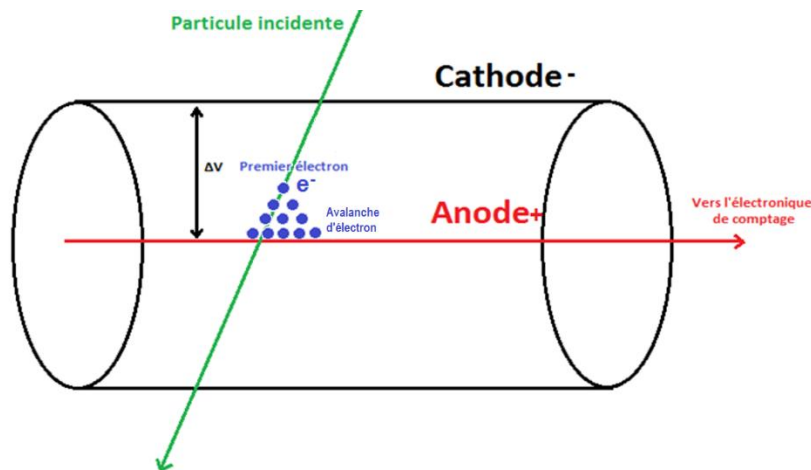


Figure 12 : Schéma explicatif d'un Geiger-Müller

Historiquement, le détecteur Geiger-Müller a été largement utilisé pour sa simplicité et sa robustesse. Néanmoins, aujourd'hui les détecteurs de type NaI seront préférés car ceux-ci offrent potentiellement des capacités spectrométriques (voir § 1.3.2).

Le traitement rapide d'une impulsion réalisé avec un détecteur NaI permet de mesurer des teneurs en uranium allant jusqu'à 10 % (résultat des mesures réalisées à la station d'étalonnage de Bessines avec la sonde NGRS, « Natural Gamma Ray Sonde » équipées d'un détecteur NaI, qui enregistre environ 5 coups par seconde par ppm<sub>U</sub> [14] soit 500 000 coups par seconde à 10 % d'uranium). Afin de ne pas faire saturer ce type de détecteur dans des roches très uranifères, comme par exemple à Cigar Lake (Canada) ayant comme teneur moyenne 20 % en uranium, on peut envisager d'utiliser des détecteurs NaI plus petits.

## 1.2.2 Comptage total : première approximation de la teneur en uranium

Dans l'hypothèse de l'équilibre des différentes chaînes de filiation de l'uranium, le nombre de rayonnements  $\gamma$  ou X enregistré par seconde dans le détecteur peut être relié à la teneur en uranium du minerai étudié [14]. Dans ce cas, on parle de coefficient d'étalonnage associé au détecteur utilisé, noté CE (en coups.s<sup>-1</sup>.ppm<sub>U</sub><sup>-1</sup>). Ce coefficient d'étalonnage peut être calculé par simulation ou encore expérimentalement sur des échantillons étalons [14]. Notons par exemple qu'ORANO dispose d'une station d'étalonnage, situé à Bessines, composée de blocs étalons (cubes en béton de 70 cm d'arête) ayant des teneurs en uranium croissantes de 0 à 9 700 ppm<sub>U</sub>. Cette station permet d'étalonner les sondes radiométriques de type NGRS ou Geiger-Müller sur cette plage de teneurs.

Néanmoins, dans le cas d'un déséquilibre des chaînes de filiation, la méthode du comptage total conduit à sous-estimer la teneur en uranium lorsque le ratio d'activités  $^{238}\text{U}/(^{214}\text{Bi}+^{214}\text{Pb})$  est supérieur à 1, et au contraire à la surestimer s'il est inférieur à 1 (voir chaîne de filiation). Cependant, dans certains cas, comme une étude préliminaire des terrains potentiellement intéressants, la teneur en uranium « apparente » qui correspondrait au taux de comptage total si la chaîne était en équilibre, notée  $U_{\text{app}}$ , peut permettre de cartographier très rapidement une zone suspectée d'avoir des teneurs en uranium intéressantes pour de futures extractions. Le taux de comptage total est aussi employé sur des bandes convoyeuses en sortie de mines ou des portiques pour camions afin de réaliser un suivi de production (COMINAK au Niger).

## 1.2.3 Méthode Thommeret

Une méthode utilisant le taux de comptage total  $\gamma$  et  $\beta$  a été développée au CEA en 1949 par J. Thommeret [15] afin de corriger les effets du déséquilibre sur le taux de comptage. Cette méthode utilisable sur des échantillons fins (pour limiter l'auto-absorption  $\beta$ ) se base sur le ratio des émissions  $\beta$  et  $\gamma$  de l'échantillon.

La méthode repose sur deux hypothèses, premièrement que la contribution  $\gamma$  dans la chaîne de l'uranium est due principalement à l'activité du radium et de ses descendants (hypothèse **H1**) et deuxièmement que ceux-ci sont en équilibre avec le  $^{226}\text{Ra}$  au bout de quelques heures (hypothèse **H2**). Dans ce cas d'équilibre, le ratio  $\beta/\gamma$  émis par cette fin de chaîne ( $^{226}\text{Ra}$  et descendants) est constant et est noté  $k$ . L'activité  $\beta$  du haut de la chaîne de l'uranium provient du  $^{234}\text{Th}$  (aussi appelé  $\text{UX}_1$ ) et du  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  ( $\text{UX}_2$ ), alors que les descendants du radium contribuent à la fois en  $\beta$  et en  $\gamma$ .

Remarque : La notion d'activité  $\beta$  et d'activité  $\gamma$  est un abus de langage afin de simplifier la compréhension de la méthode. Elle reflète les comptages associés respectivement aux émissions  $\beta$  et  $\gamma$ . Néanmoins, on conservera ces notations afin de respecter la publication de J. Thommeret.

On peut déduire du paragraphe précédent que :

$$A_{\beta+\gamma}(\text{Tot}) = A_{\beta}(\text{U}) + A_{\gamma}(\text{U}) + A_{\beta}(\text{Ra}) + A_{\gamma}(\text{Ra})$$



Avec :

- $A_{\beta+\gamma}(Tot)$  : activité  $(\beta + \gamma)$  de l'échantillon
- $A_{\beta}(U)$  : activité  $\beta$  de l'échantillon due à l'uranium
- $A_{\gamma}(U)$  : activité  $\gamma$  de l'échantillon due à l'uranium
- $A_{\beta}(Ra)$  : activité  $\beta$  de l'échantillon due au radium et à ses descendants
- $A_{\gamma}(Ra)$  : activité  $\gamma$  de l'échantillon due au radium et à ses descendants

Avec l'hypothèse **H1** :  $A_{\gamma}(Ra) \gg A_{\gamma}(U)$

D'où :  $A_{\beta+\gamma}(Tot) = A_{\beta}(U) + A_{\beta}(Ra) + A_{\gamma}(Ra)$

Avec l'hypothèse **H2** :  $A_{\beta}(Ra) = k \times A_{\gamma}(Ra)$

D'où :  $A_{\beta+\gamma}(Tot) = A_{\beta}(U) + k \times A_{\gamma}(Ra) + A_{\gamma}(Ra)$

Ainsi :

$$A_{\beta}(U) = A_{\beta+\gamma}(Tot) - (k + 1) \times A_{\gamma}(Ra)$$

Des échantillons étalons permettent de tracer une courbe d'étalonnage entre l'activité  $\beta$  et la teneur en uranium. Si on pose  $Cm_U(Thommeret)$  la teneur en uranium mesurée par la méthode Thommeret et  $C$  la pente de la courbe d'étalonnage :

$$Cm_U(Thommeret) = C \times A_{\beta}(U)$$

$$Cm_U(Thommeret) = C \times [A_{\beta+\gamma}(Tot) - (k + 1) \times A_{\gamma}(Ra)]$$

Expérimentalement, la démarche présentée ci-dessus nécessite 5 étapes :

- calculer le coefficient  $C = \frac{Cm_U}{A_{\beta}(U)}$  grâce à des échantillons étalon en uranium,
- mesurer le coefficient  $k = \frac{A_{\beta}(Ra)}{A_{\gamma}(Ra)}$  grâce à un échantillon seulement composé de radium et de ses descendants à l'équilibre (par exemple un sel de radium), ce coefficient  $k$  dépendant des compteurs  $\beta$  et  $\gamma$  utilisés,
- mesurer l'activité totale  $A_{\beta+\gamma}(Tot)$  de l'échantillon avec un détecteur Geiger-Müller (ou aujourd'hui avec un scintillateur plastique),
- mesurer l'activité  $A_{\gamma}(Ra)$  de l'échantillon avec un détecteur Geiger-Müller (ou aujourd'hui un détecteur NaI) combiné à un écran en acier (1.5 mm d'épaisseur) pour arrêter les rayons  $\beta$ ,
- calculer  $Cm_U(Thommeret)$ .

L'avantage considérable de cette méthode est sa rapidité d'évaluation de la teneur en uranium sans être soumis au déséquilibre U/Ra de la chaîne de filiation de l'uranium. Cependant, les échantillons doivent être uniquement composés d'uranium et non de thorium car sa chaîne induit des surestimations de comptage dans l'activité  $\gamma$  mesurée et donc une sous-estimation de  $Cm_U(Thommeret)$ . De plus, cette méthode n'est plus valable à très forte concentration d'uranium en raison de la saturation de la chaîne de mesure (les compteurs Geiger-Müller notamment sont très lents) et il faut donc passer par une dilution de l'échantillon. Néanmoins, les chaînes de mesures actuelles avec des détecteurs à scintillation (intrinsèquement très rapide) permettent la mesure d'échantillons fortement enrichis. ORANO développe d'ailleurs une nouvelle sonde bêta-gamma basée sur la méthode Thommeret avec des scintillateurs plastique ( $\beta+\gamma$ ) et NaI ( $\gamma$ ).

## I.3 Spectrométrie Gamma

La caractérisation d'un minéral par spectrométrie gamma est très utilisée en laboratoire ou sur site et peut être divisée en deux grandes méthodes : la spectrométrie gamma haute résolution (détecteur type GeHP) et la spectrométrie gamma basse résolution (LaBr<sub>3</sub>, NaI). Ces deux technologies présentées dans les sous-parties suivantes présentent des avantages et des inconvénients abordés par la suite.

### I.3.1 Spectrométrie gamma haute résolution

#### I.3.1.1 Détecteur à semi-conducteur : cas du germanium

La spectrométrie gamma haute résolution à base de germanium hyper pur (semi-conducteur) permet de mesurer l'énergie d'un rayonnement  $\gamma$  suite à son interaction avec les atomes du milieu et la création de paires électrons-trous. Grâce à un champ électrique appliqué au sein du germanium on peut collecter ces charges et obtenir un signal proportionnel à l'énergie du rayonnement incident. De plus, le germanium a un numéro atomique relativement élevé ( $Z=32$ ), ce qui lui permet d'avoir une bonne efficacité de détection pour les rayonnements gamma des chaînes de filiation de l'uranium (voir Tableau 1 au § I.3.1.2). Afin de réduire son bruit, le cristal de germanium doit être refroidi. Ce refroidissement peut être réalisé avec de l'azote liquide (voir Figure 14) ou un cryo-générateur électrique (cas du détecteur Falcon 5000 utilisé pendant la thèse – voir Chapitre II).

La chaîne de mesure historiquement utilisée en spectrométrie gamma haute résolution [13] est représentée sur la Figure 13. Chaque élément de la chaîne est abordé en annexe A.1.

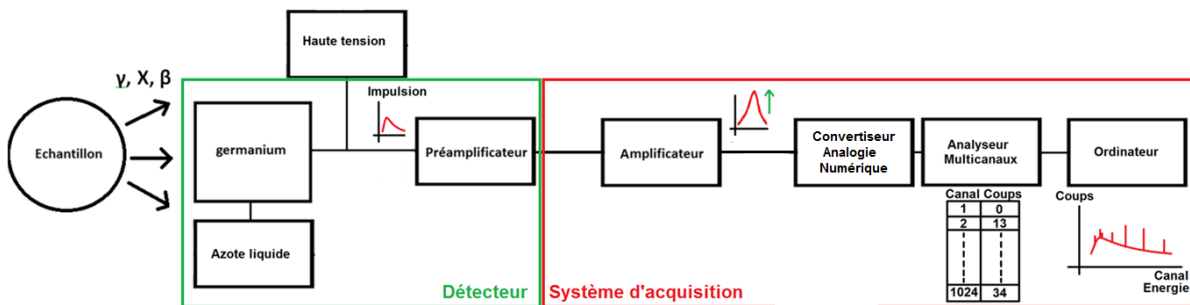


Figure 13 : Chaîne de mesure en spectrométrie  $\gamma$

Les détecteurs *BEGe* et *Coaxial Ge* (voir annexe A.1) ont été utilisés à la station d'étalonnage de Bessines par le Laboratoire de Mesures Nucléaires pour étudier la faisabilité de nouvelles méthodes de quantification de la teneur en uranium des minerais. Ces mesures sont abordées en conclusion de ce chapitre afin d'introduire les nouvelles méthodes développées pendant la thèse pour la prospection minière.

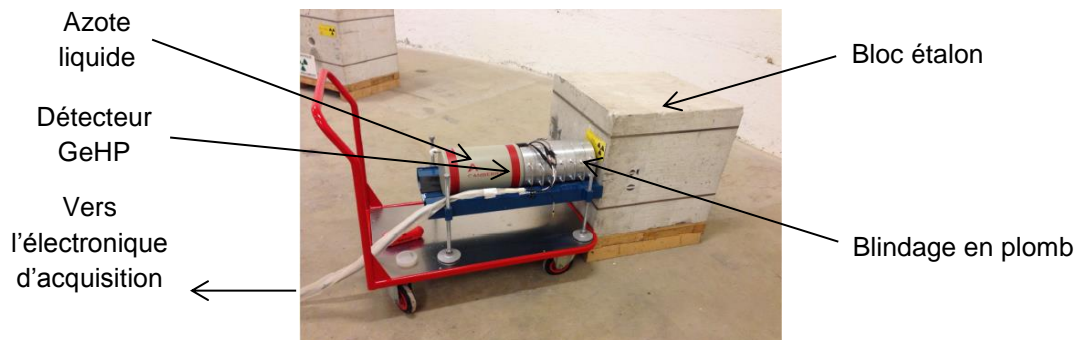


Figure 14 : Mesure de spectrométrie gamma haute résolution menée avec un détecteur germanium (*BEGe* 2020) par le Laboratoire de Mesures Nucléaires au sein de la station d'étalonnage de Bessines



### I.3.1.2 Emissions gamma mesurées

Différentes méthodes de spectrométrie gamma haute résolution au germanium hyper pur (GeHP) sont utilisées en laboratoire mais peu sur les sites d'extraction, même si de nouveaux détecteurs GeHP plus facilement transportables, refroidis électriquement et avec une électronique intégrée (comme le Falcon 5000 – Canberra [16]), sont désormais utilisés au Gabon, en Mongolie ou encore au Kazakhstan par ORANO [7].

La Figure 15 représente un spectre gamma issu d'une mesure réalisée sur un échantillon de minerai d'uranium d'environ 1500 ppm<sub>U</sub> (fraction massique d'uranium en ppm, c'est-à-dire en mg par kg d'échantillon) avec un détecteur Falcon 5000 (type GeHP).

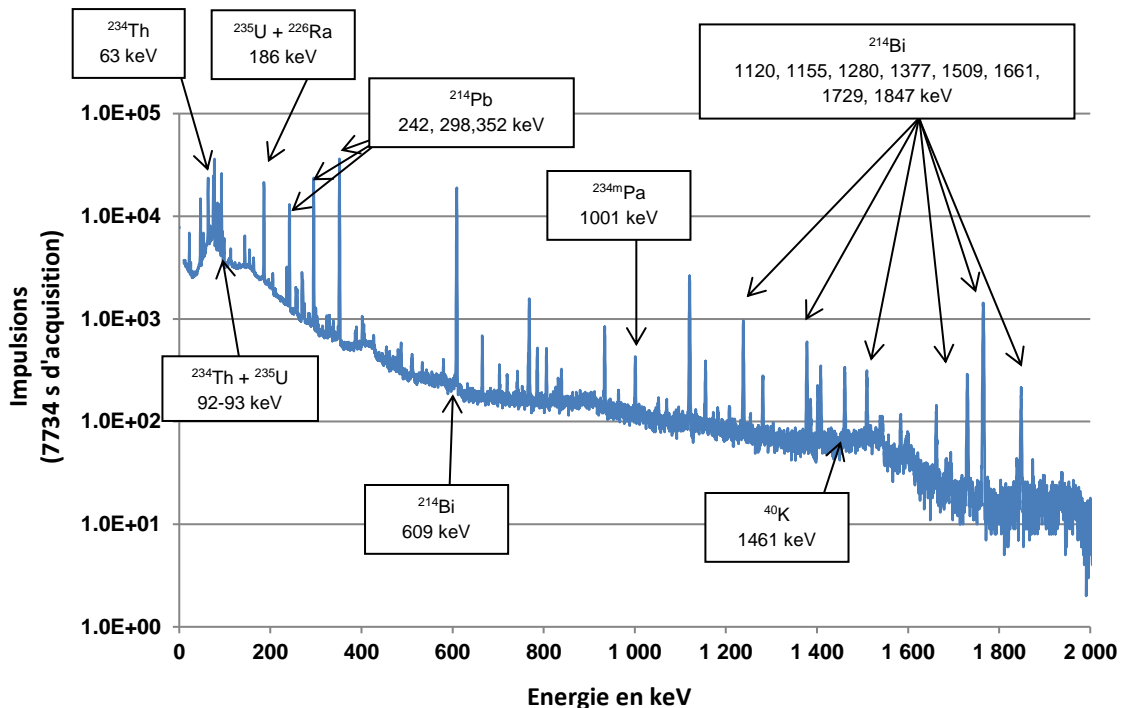


Figure 15 : Spectre gamma typique mesuré d'un échantillon d'uranium à 1500 ppm<sub>U</sub>

On peut noter le nombre important de rayonnements  $\gamma$  et X issus d'un minerai d'uranium qui peuvent être identifiés avec un détecteur GeHP. Ce nombre important de données permet une caractérisation fine du minerai en utilisant les données nucléaires de chaque nucléide présent dans les chaînes de filiation de l'uranium (période radioactive, masse molaire, déséquilibres potentiels des chaînes...). On peut par exemple, mesurer la teneur en uranium du minerai et les différents déséquilibres (voir § 1.3.1.3) des chaînes de filiation ou s'assurer de la bonne correction de l'atténuation gamma dans l'échantillon (auto-absorption) en comparant les activités d'un même radioélément pour différentes énergies comme pour le  $^{214}\text{Bi}$  et le  $^{214}\text{Pb}$  où les activités calculées à 242 keV, 352 keV, 609 keV et 1120 keV doivent être égales, aux incertitudes statistiques de comptage près.

Les méthodes actuelles pour obtenir la teneur en uranium d'un échantillon de minerai par spectrométrie gamma haute résolution se basent principalement sur des raies gamma issues de la chaîne de décroissance radioactive de l' $^{238}\text{U}$  :

- La raie émise par le  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  à 1001 keV [17]. Située en haut de chaîne de filiation de l' $^{238}\text{U}$  (voir Figure 8), le  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  n'est pas soumis aux déséquilibres potentiels des chaînes de filiation en présence. De plus, grâce à son énergie relativement élevée, cette raie est peu influencée par les variations des caractéristiques physiques de l'échantillon (minéralogie, densité, hétérogénéités...)

en termes d'atténuation photonique, ce qui la rend intéressante pour des mesures de terrain. Cependant, son intensité d'émission (0.83 %) est faible et nécessite des temps d'acquisition de plusieurs heures,

- La raie émise à 92 keV. Cette raie est dominée principalement par les émissions de deux radionucléides :
  - ① l'émission spontanée d'un rayon X à 93.35 keV (qui contribue au signal à 92 keV en raison de la résolution du détecteur) lié à  $^{235}\text{U}$ . Cette émission provient de la réorganisation du cortège électronique de l'atome de thorium suite à la désintégration  $\alpha$  de l'U vers le  $^{231}\text{Th}$ . Son intensité d'émission est tabulée et vaut  $I_{93\text{ keV}}(^{235}\text{U}) = 5.56\%$ ,
  - ② l'émission d'un doublet gamma du  $^{234}\text{Th}$  à 92.38 keV et 92.80 keV (situé en haut de la chaîne de  $^{238}\text{U}$ ). L'intensité d'émission totale  $I_{92\text{ keV}}(^{234}\text{Th})$  vaut 4.33 % [6]). Cette contribution est majoritaire dans un minerai d'uranium naturel (0.7 % d' $^{235}\text{U}$ ).

De la même manière que la raie du  $^{234\text{m}}\text{Pa}$ , celle-ci est issue de deux nucléides présents en haut de chaîne de filiation de l'uranium et n'est donc pas soumise aux déséquilibres potentiels de cette chaîne. De plus, cette raie est située dans une zone énergétique où l'efficacité d'un détecteur germanium est maximale ce qui rend les temps d'acquisition largement plus faibles que pour la raie à 1001 keV (voir Figure 68). Cependant, ce rayonnement de faible énergie peut être soumis à de fortes variations d'atténuation selon la densité, la minéralogie ou l'hétérogénéité de l'échantillon mesuré.
- Différentes autres raies issues des deux chaînes de filiation de l'uranium peuvent aussi être exploitées [18], [19]. En effet, si on considère les deux chaînes à l'équilibre, chaque raie issue de chaque nucléide présente une aire nette proportionnelle à la teneur en uranium de l'échantillon. Le tableau suivant représente les raies gamma principalement utilisées pour caractériser un échantillon d'uranium ainsi que leur intensité correspondante.

**Tableau 2 : Raies classiquement utilisées en spectrométrie gamma haute résolution pour caractériser un minerai d'uranium [18], [19]**

| Nucléides                              | Energie en keV<br>(intensité en %)   | Commentaires  |
|--|--|---|
| $^{235}\text{U}$<br>$^{226}\text{Ra}$  | 185.71 (57.2)<br>186.2 (3.59)  | Raie classiquement utilisée pour la mesure du déséquilibre U/Ra de l'échantillon (voir § 1.3.1.3)                                   |
| $^{235}\text{U}$<br>$^{234}\text{Pa}$  | 163.33 (5.08)<br>164.94 (0.0515)   | Raie de très faible intensité en raison du ratio d'activités $^{235}\text{U}/^{238}\text{U} = 0.046$                                |
| $^{234}\text{Th}$<br>$^{231}\text{Th}$ | 63.29 (4.84)<br>63.86 (0.023)  | Raie de faible énergie. Soumise à la minéralogie et à la densité de l'échantillon.  |
| $^{234}\text{Th}$<br>$^{235}\text{U}$  | 92.5 (4.33)<br>93.35 (5.56)  | Raie explicitée ci-dessus   |
| $^{234\text{m}}\text{Pa}$              | 766.38 (0.294)   | Raie de mêmes caractéristiques que celle à 1001 keV avec une émission plus faible   |
|  | 1001.03 (0.837)  | Raie explicitée ci-dessus   |
| $^{214}\text{Pb}$ et $^{214}\text{Bi}$ | 242 (7.43) - 295.2 (19.3) -<br>351.9 (37.6) - 785.96 (1.07) - 609.3<br>(46.1) - 934.1 (3.03) - 1120.29<br>(15.1) - 1764.5 (15.4) -<br>2204.21 (5.08) | Famille de rayonnements $\gamma$ ayant une forte intensité d'émission. Ces deux nucléides sont en fin de chaîne de $^{238}\text{U}$ |

**Remarque :** Le Tableau 2 est une liste non exhaustive de raies traitées pour étudier un échantillon d'uranium. En effet, on peut y rajouter celle du  $^{208}\text{Tl}$  à 2614 keV classiquement utilisée pour caractériser la teneur en thorium ainsi que la raie du  $^{40}\text{K}$  à 1461 keV pour caractériser la teneur en potassium.

### 1.3.1.3 Détermination de la teneur en uranium d'un échantillon via les raies du spectre $\gamma$

Ce paragraphe illustre le traitement réalisé sur la raie à 1001 keV afin de caractériser la teneur d'un minéral d'uranium, qui peut être appliqué aux autres raies gamma présentes dans le spectre.

Soit  $A(^{238}_{92}\text{U})$  l'activité de  $^{238}\text{U}$  dans l'échantillon, en becquerel ( $\text{s}^{-1}$ ) :

$$A(^{238}_{92}\text{U}) = \ln(2) \times \frac{N_{238\text{U}}}{T_{\frac{1}{2}}(^{238}_{92}\text{U})}$$

Avec :

- $T_{\frac{1}{2}}(^{238}_{92}\text{U})$  : période radioactive de  $^{238}\text{U}$  ( $4.468 \times 10^9$  ans)
- $N_{238\text{U}}$  : nombre d'atomes d' $^{238}\text{U}$  présents dans l'échantillon

Soit  $M_{ech}$  la masse de l'échantillon en grammes et  $A_m(^{238}_{92}\text{U})$  l'activité massique ( $\text{Bq.g}_{ech}^{-1}$ ) en  $^{238}\text{U}$  :

$$A_m(^{238}_{92}\text{U}) = \frac{A(^{238}_{92}\text{U})}{M_{ech}}$$

Le nombre d'atomes d' $^{238}\text{U}$  est donné par :

$$N(^{238}_{92}\text{U}) = \frac{m_{238\text{U}}}{M(^{238}_{92}\text{U})} \times N_A$$

Où :

- $N_A$  : nombre d'Avogadro ( $6,022 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$ )
- $m_{238\text{U}}$  : masse d' $^{238}\text{U}$  dans l'échantillon (en grammes)
- $M(^{238}_{92}\text{U})$  : masse molaire de  $^{238}\text{U}$  ( $238,0507 \text{ g.mol}^{-1}$ )

Ainsi,

$$A_m(^{238}_{92}\text{U}) = \frac{\ln(2) \times N_A \times m_{238\text{U}}}{M(^{238}_{92}\text{U}) \times M_{ech} \times T_{\frac{1}{2}}(^{238}_{92}\text{U})}$$

La teneur massique en uranium, notée  $Cm_U$  et exprimée en ppm ( $\frac{\text{mg}_U}{\text{kg}_{ech}}$ ), peut être exprimée en utilisant l'abondance naturelle de l'isotope  $^{235}\text{U}$  (0.72 %) :

$$m_u = m_{238\text{U}} + m_{235\text{U}} = (1 + 0.0072) \times m_{238\text{U}}$$

Avec :

- $m_{235\text{U}}$  : masse totale en  $^{235}\text{U}$  dans l'échantillon (en grammes)
- $m_u$  : masse d'uranium dans l'échantillon (en grammes)

D'où:

$$Cm_u = \frac{1.0072 \times 10^6 \times m_{238\text{U}}}{M_{ech}}$$

Le facteur  $10^6$  est introduit pour exprimer  $m_{238\text{U}}$  et  $M_{ech}$  dans la même unité (g) alors que  $Cm_u$  s'exprime en  $\text{ppm}_U = \frac{\text{mg}_U}{\text{kg}_{ech}}$ .

Alors :

$$A_m(^{238}\text{U}) = \frac{\ln(2) \times \text{Na} \times \text{Cm}_u}{1.0072 \times 10^6 \times M(^{238}\text{U}) \times T_1(^{238}\text{U})} \quad (\text{Eq. 1.1})$$

Or la surface nette de la raie à 1001 keV du spectre gamma étudié permet de remonter à l'activité massique en  $^{238}\text{U}$  par la formule :

$$A_m(^{238}\text{U}) = \frac{S_n(1001 \text{ keV}) - \text{Bdf}(1001 \text{ keV})}{\text{Eff}_{1001\text{keV}} \times I_{1001\text{keV}}(^{234\text{m}}\text{Pa}) \times T_c \times M_{ech}} \quad (\text{Eq. 1.2})$$

Avec:

- $S_n(1001 \text{ keV})$  : nombre de coups dans la raie à 1001 keV (aire nette après soustraction du continuum Compton) lors de la mesure de l'échantillon, qui comprend le nombre de coups du bruit de fond (ci-dessous),
- $\text{Bdf}(1001 \text{ keV})$  : nombre de coups émis dans la raie à 1001 keV lors de la mesure du bruit de fond sans échantillon (aire nette après soustraction du continuum Compton également),
- $\text{Eff}_{1001\text{keV}}$  : efficacité du détecteur à 1001 keV (sans dimension : nombre de coups dans le pic à 1001 keV par photon gamma de 1001 keV émis dans l'échantillon) calculée par simulation (ISOCS [20] ou MCNP [21]) ou déduite d'un étalonnage expérimental (courbe d'efficacité),
- $I_{1001\text{keV}}(^{234\text{m}}\text{Pa})$  : intensité d'émission du  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  à 1001 keV (nombre de photons émis par désintégration). Sa valeur classiquement utilisée est de  $0.835 \pm 0.004 \%$ ,
- $T_c$  : temps de comptage (en secondes).

L'égalité entre (Eq. 1.1) et (Eq. 1.2) permet donc de déterminer la teneur en uranium d'un échantillon en utilisant la raie à 1001 keV issu du  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  :

$$\text{Cm}_u(1001 \text{ keV}) = \frac{1.0072 \times 10^6 \times M(^{238}\text{U}) \times T_1(^{238}\text{U}) \times [S_n(1001 \text{ keV}) - \text{Bdf}(1001 \text{ keV})]}{\text{Eff}_{1001\text{keV}} \times I_{1001\text{keV}}(^{234\text{m}}\text{Pa}) \times T_c \times M_{ech} \times \text{Na} \times \ln(2)}$$

Dans le cas d'un équilibre de la chaîne de filiation de  $^{238}\text{U}$ , la formule précédente reste vraie pour n'importe quelle émission spontanée ( $\gamma$  ou X) de cette chaîne en utilisant l'efficacité de détection et l'intensité de la raie correspondante.

Le calcul de déséquilibre peut être aussi mené sur les activités massiques calculées pour les nucléides concernés. Typiquement, pour estimer un déséquilibre  $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$  la méthode suivante est employée :

- estimation de l'activité massique  $A_m(^{238}\text{U})$  par la raie à 1001 keV,
- calcul de  $A_m(^{235}\text{U})$  avec l'abondance isotopique relative en  $^{238}\text{U}$  et  $^{235}\text{U}$  ( $\frac{A_m(^{235}\text{U})}{A_m(^{238}\text{U})} = 0.046$ ),
- soustraction du nombre de coups dû à  $^{235}\text{U}$  dans la raie à 185 keV (en utilisant la courbe d'efficacité),
- estimation du nombre de coups dû au  $^{226}\text{Ra}$  à 185 keV et de l'activité massique associée,
- calcul du déséquilibre U/Ra qui est égal au ratio entre l'activité massique de  $^{238}\text{U}$  et celui du  $^{226}\text{Ra}$ .

De la même manière, d'autres déséquilibres peuvent être évalués tels que  $^{238}\text{U}/^{230}\text{Th}$ ,  $^{230}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$ ,  $^{226}\text{Ra}/^{214}\text{Bi}$  ou encore  $^{238}\text{U}/^{234}\text{U}$ .

## 1.3.2 Spectrométrie gamma basse résolution

### 1.3.2.1 Principales différences avec la spectrométrie haute résolution

Comme on l'a vu au paragraphe précédent, la résolution d'un détecteur Ge est très bonne, alors qu'un détecteur à scintillation présente une résolution plus faible (voir graphique suivant récapitulant les

résolutions moyennes des détecteurs germanium, NaI et LaBr<sub>3</sub> [22]). Cette résolution est quantifiée par la largeur à mi-hauteur LTMH (largeur totale à mi-hauteur) des pics de forme gaussienne.

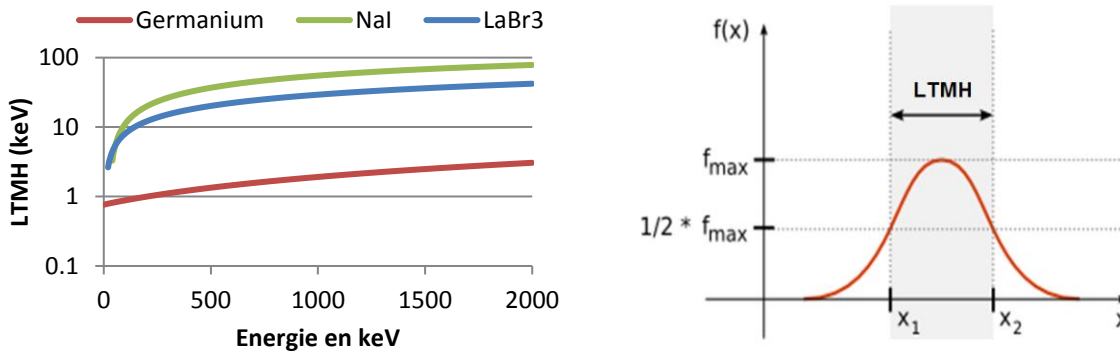


Figure 16 : Résolutions types d'un détecteur GeHP ainsi que des scintillateurs NaI et LaBr<sub>3</sub> [22].

La résolution plus faible entraîne la déformation du spectre d'un détecteur LaBr<sub>3</sub> comme l'illustre la Figure 17 qui superpose deux mesures réalisées en spectrométrie haute et basse résolution par le Laboratoire de Mesures Nucléaires sur un même bloc étalon (béton chargé en uranium) de la station d'étalonnage d'ORANO de Bessines (voir § I.6.1).

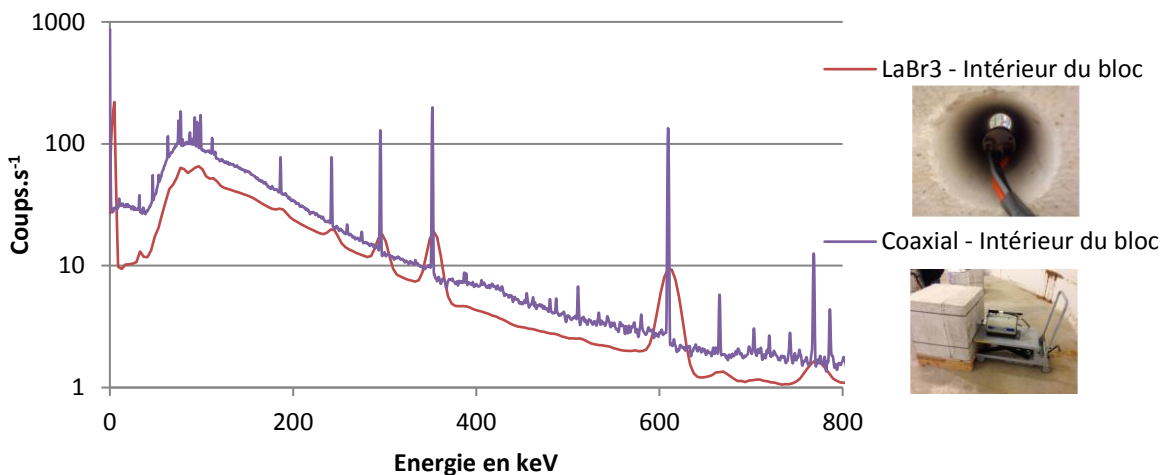


Figure 17 : Spectres gamma mesurés sur un même bloc étalon par le LMN à la station d'étalonnage de Bessines avec un détecteur germanium coaxial et un détecteur à scintillation LaBr<sub>3</sub>.

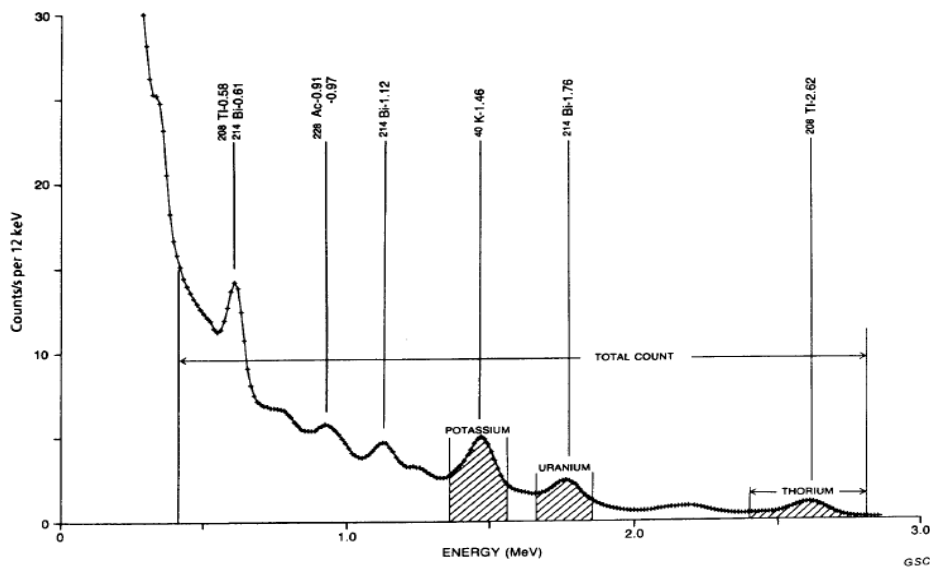
Malgré leur résolution, les détecteurs à scintillation sont préférés lorsque le taux de comptage est faible car ils peuvent être usinés avec de grands volumes et à faible coût (NaI) afin d'augmenter l'efficacité de détection.

Les spectres obtenus par spectrométrie gamma basse résolution sont par la suite traités de différentes manières. En effet, ils peuvent être analysés de manière identique à la spectrométrie gamma haute résolution (ajustement gaussien sur les raies en présence notamment quand elles sont peu nombreuses et bien séparées [23]–[25]) ou interprétés par des méthodes d'analyse de l'ensemble du spectre (déconvolution [26] des différentes contributions de chaque nucléide) ou de bandes d'énergie, telles que présentées dans les parties suivantes.

### I.3.2.2 Mesure basées sur les raies du spectre $\gamma$

Les mesures aéroportées par spectrométrie gamma [27]–[30], aussi appelées SGA pour Spectrométrie Gamma Aéroportée, ont permis depuis plusieurs années de cartographier de larges zones à travers le

monde à des fins de prospection minière [31]–[33] . Un avion ou hélicoptère volant à basse altitude (en moyenne 100 m) est équipé de plusieurs détecteurs NaI de grand volume (volume total de 16 à 50 L). La vitesse de vol est optimisée suivant la mesure à réaliser (radioéléments recherchés, bruit de fond) et la zone à cartographier. Elle ne doit ni être trop faible afin de limiter le bruit de fond dû à une éventuelle anomalie ponctuelle sur la surface, ni trop grande pour permettre des comptages suffisants. Typiquement, la vitesse est de l'ordre de 70 m.s<sup>-1</sup>. Les spectres obtenus, mesurés le plus communément sur une distance longitudinale de plusieurs centaines de mètres, permettent une caractérisation d'une teneur en uranium, en thorium et en potassium sur quelques dizaines de centimètre de profondeur. Un spectre typique obtenu avec un spectromètre aéroporté est représenté sur la Figure 18. Celui-ci est obtenu suite à une mesure longue sur un bloc étalon situé à Walkfer Field, Grand Junction, Colorado-USA. Les spectres d'une mesure aéroportée sont plus bruités mais de même forme.



**Figure 18 : Spectre typique d'une spectrométrie gamma aéroportée obtenue lors d'une acquisition longue sur un bloc étalon situé à Walker Field [27]**

Afin de déduire du spectre mesuré les concentrations en uranium, thorium et potassium, celui-ci est communément divisé en 3 ou 4 zones énergétiques (voir tableau suivant) pour caractériser chaque chaîne et remonter ainsi aux trois teneurs recherchées : uranium, thorium et potassium.

**Tableau 3 : Zones énergétique sélectionnées pour une mesure de spectrométrie gamma aéroportée [27]**

| Fenêtre              | Energie minimum | Energie maximum | Raie étudiée                  |
|----------------------|-----------------|-----------------|-------------------------------|
| Potassium            | 1370 keV        | 1570 keV        | 1460 keV ( <sup>40</sup> K)   |
| Uranium              | 1660 keV        | 1860 keV        | 1765 keV ( <sup>214</sup> Bi) |
| Thorium              | 2410 keV        | 2810 keV        | 2614 keV ( <sup>208</sup> Tl) |
| Rayonnement cosmique | 3000 keV        | ∞               | -                             |

On note que les teneurs calculées pour l'uranium et le thorium ne sont que des teneurs équivalentes car elles sont obtenues grâce à des nucléides présents en fin de leurs chaînes respectives (<sup>214</sup>Bi et <sup>208</sup>Tl). En connaissant la résolution des détecteurs communément utilisée (environ 9 % pour la raie du <sup>137</sup>Cs à 622 keV avec un détecteur NaI) et les efficacités de détection on peut déduire de l'activité massique (calcul au § I.3.1.3) les teneurs en potassium, uranium et thorium équivalentes. On note cependant que cette méthode dépend essentiellement des corrections effectuées pour calculer l'efficacité de détection qui dépend fortement de l'altitude de vol, de la vitesse de l'avion, de la densité, de l'humidité, de la composition du terrain ou du bruit de fond cosmique [27].

**Remarque :** La méthode développée pour la mesure aéroportée peut être exportée sur échantillon, carotte ou puits de forage avec le même facteur limitant : la résolution du détecteur.

### 1.3.2.3 Analyse par bandes d'énergie

- Mesures sur échantillons

Une méthode définissant des régions énergétiques d'intérêt pour l'analyse d'échantillons a été mise au point en 1966 par J.M Domingos et A.A.Melo à l'université du Mozambique [34]. Elle utilise un détecteur NaI en spectrométrie basse résolution et repose sur une décomposition spectrale en trois zones d'énergie distinctes :

- de 52 à 108 keV afin de mesurer la contribution de l'uranium dans le spectre grâce à l'émission à 63 keV et 92 keV du  $^{234}\text{Th}$ . Cette zone est bruitée potentiellement par le  $^{232}\text{Th}$  avec l'émission de nombreuses raies X et d'un rayonnement gamma à 84 keV du  $^{228}\text{Th}$ ,
- de 560 à 660 keV afin de mesurer la contribution de fin de chaîne de l'uranium. Cette zone est dominée par l'émission d'un rayonnement gamma du  $^{214}\text{Bi}$  à 609 keV,
- de 2.46 à 2.76 MeV afin de prendre en compte de façon très sélective le  $^{232}\text{Th}$  grâce à l'émission d'un rayonnement gamma du  $^{208}\text{Tl}$  à 2614 keV (non interféré par d'autres rayonnements à cette énergie).

**Remarques :** La zone de 560 à 660 keV est définie pour mesurer la contribution du  $^{214}\text{Bi}$  avec son émission gamma à 609 keV. Cependant, on peut aisément remplacer cette zone par des zones équivalentes représentant la contribution de fin de chaîne de l'uranium comme des zones à 242 keV, 298 keV ou encore 352 keV qui représentent des rayonnements gamma du  $^{214}\text{Pb}$  [35] à l'équilibre avec le  $^{214}\text{Bi}$ .

On fait correspondre respectivement aux trois zones d'énergie, trois taux de comptage  $C_1$ ,  $C_2$  et  $C_3$  qui sont influencés par la teneur en uranium et en thorium ( $Cm_U$  et  $Cm_{Th}$ ) de l'échantillon :

$$\begin{cases} C_1 = (K_U^1 + pK_{Ra}^1) \times Cm_U + K_T^1 \times Cm_{Th} \\ C_2 = (K_U^2 + pK_{Ra}^2) \times Cm_U + K_T^2 \times Cm_{Th} \\ C_3 = (K_U^3 + pK_{Ra}^3) \times Cm_U + K_T^3 \times Cm_{Th} \end{cases}$$

Avec :

- $K_U^i$  : coefficients d'étalonnage liés au groupe de l'uranium (de l' $^{238}\text{U}$  à l' $^{234}\text{U}$ ) qui dépendent de la géométrie de mesure (en coups.s<sup>-1</sup>.ppm<sup>-1</sup>),
- $K_{Ra}^i$  : coefficients d'étalonnage liés au groupe du radium (du  $^{226}\text{Ra}$  au  $^{206}\text{Pb}$ ) qui dépendent de la géométrie de mesure (en coups.s<sup>-1</sup>.ppm<sup>-1</sup>),
- $K_T^i$  : coefficients d'étalonnage liés à la chaîne de filiation du  $^{232}\text{Th}$  qui dépendent de la géométrie de mesure (en coups.s<sup>-1</sup>.ppm<sup>-1</sup>),
- $p$  : facteur de déséquilibre de la chaîne de filiation entre l'uranium et le radium (sans unité).

Des équations précédentes, on peut extraire  $Cm_U$ ,  $Cm_{Th}$  et  $p$  :

$$\begin{cases} Cm_U = u_1 \times C_1 + u_2 \times C_2 + u_3 \times C_3 \\ Cm_{Th} = th_1 \times C_1 + th_2 \times C_2 + th_3 \times C_3 \\ p = p_1 \times C_1 + p_2 \times C_2 + p_3 \times C_3 \end{cases}$$

où les paramètres  $u_1, u_2, u_3, th_1, th_2, th_3, p_1, p_2$  et  $p_3$  dépendent des coefficients d'étalonnage  $K_U, K_{Ra}$  et  $K_T$ . Il est possible de déterminer expérimentalement ces 9 facteurs ( $u_1$  à  $p_3$ ) permettant de lier  $Cm_U, Cm_{Th}$  et  $p$  aux taux de comptage mesurés dans les trois zones du spectre. Pour ce faire, on mesure des échantillons étalons de teneurs et déséquilibre U/Ra connus (5 échantillons dans le cas de l'étude de J.M DOMINGOS et A.A MELO). De ces mesures, on déduit la valeur optimale des paramètres  $u_1$  à  $p_3$  reflétant au mieux le système d'équations précédent pour les échantillons étalons en utilisant la méthode des moindres carrés. Cette démarche permet de trouver la matrice la plus adéquate pour calculer  $Cm_U, Cm_{Th}$  et  $p$ .

Les résultats obtenus par J.M DOMINGOS et A.A MELO montrent la faisabilité expérimentale de cette approche. Notons qu'en cas de concassage du minerai, une évaporation du radon se produit. Ces mesures ne doivent donc être réalisées qu'une trentaine de jours après broyage du minerai, temps nécessaire à un retour en équilibre des descendants  $^{214}Pb$  et  $^{214}Bi$  du  $^{222}Rn$ , la période de ce dernier (3.82 jours) gouvernant ce retour à l'équilibre.

Les hypothèses réalisées sur une telle mesure sont l'équilibre radioactif de la fin de chaîne de l'uranium allant du  $^{226}Ra$  au  $^{206}Pb$  et le faible impact de l'auto-atténuation de l'uranium sur le taux de comptage dans la zone allant de 52 keV à 108 keV, ce qui n'est vrai qu'à faible teneur [14].

Remarque : La méthode par bandes d'énergie peut être exportée sur la mesure des puits de forage [36]. En effet, un matériel spectrométrique peut être utilisé sur les sondes radiométriques.

#### - Mesures par spectrométrie gamma aéroportées

La méthode par bandes d'énergie est aussi utilisée en spectrométrie gamma aéroportée. Les zones énergétiques sélectionnées sont celles abordées au Tableau 3. La contribution de l'uranium, du thorium ou du potassium dans chaque zone énergétique est connue grâce à la mesure de blocs étalons uniquement composés d'une de ces trois chaînes radioactives (voir Figure 19, Figure 20 et Figure 21). Dès lors, on définit de la même manière une matrice 3x3 où les coefficients ne sont que les taux de comptage de chaque chaîne de filiation dans les 3 zones énergétiques judicieusement sélectionnées (Tableau 3). On note cependant que les teneurs calculées ne sont que des teneurs équivalentes car elles reposent sur des zones énergétiques où les émissions ne sont pas directement liées à l'uranium et au thorium.

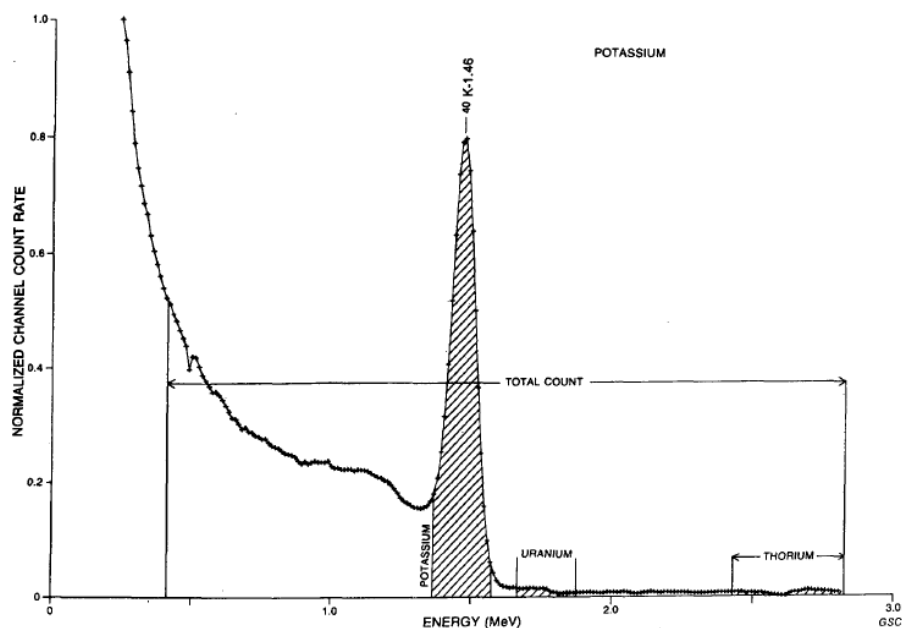


Figure 19 : Spectre potassium



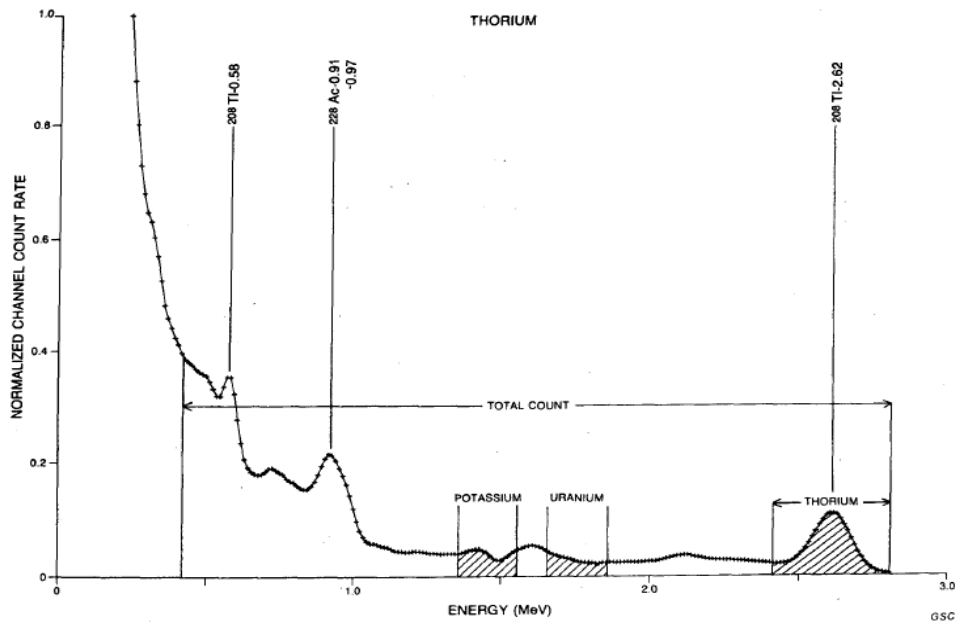


Figure 20 : Spectre thorium

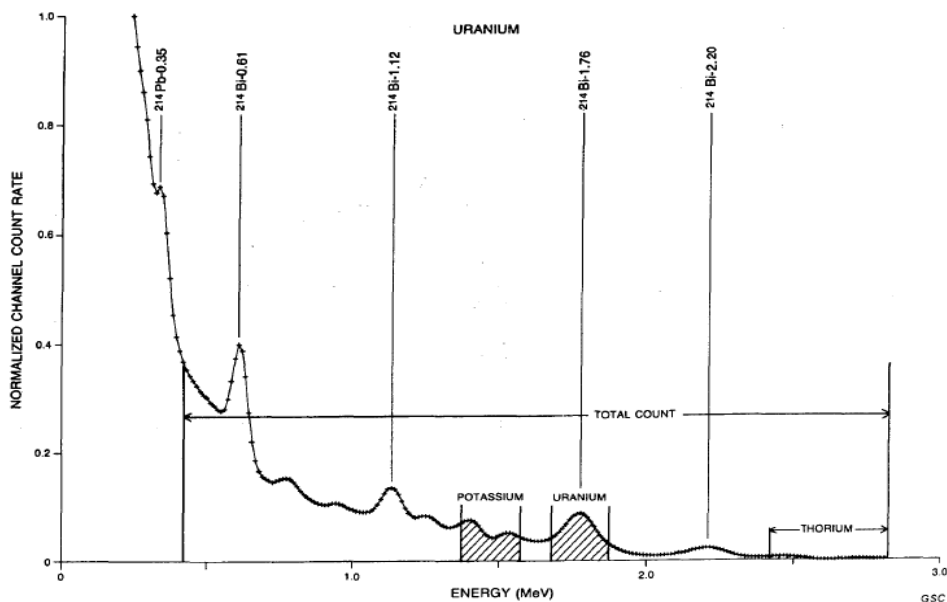


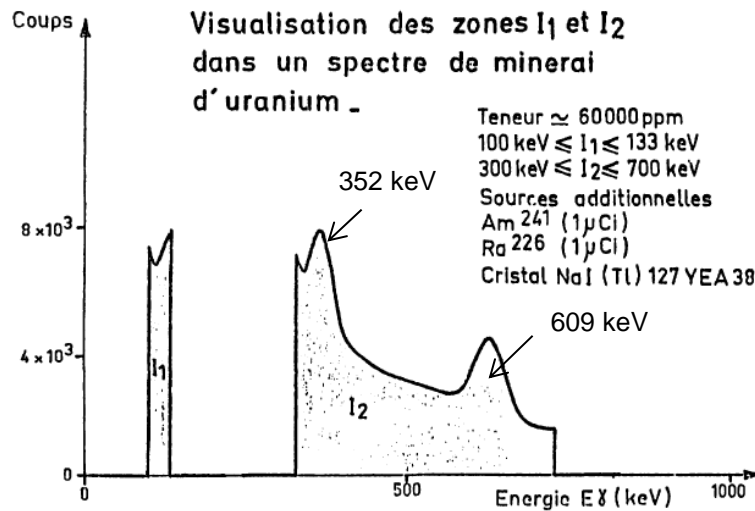
Figure 21 : Spectre uranium

Remarque : On note une autre méthode développée en spectrométrie gamma aéroportée afin de mesurer les différentes teneurs. Cette méthode repose sur une analyse en composantes principales des différents spectres mesurés et est abordée en annexe A.2.

- Mesures sur des camions convoyeurs de minerais

Une méthode équivalente afin de déterminer la teneur en uranium des minerais présents dans un camion [37] en sortie de mine a été développée par J.A. Czubek et M. Dumesnil [38]. Ces mesures permettent une caractérisation du minerai sans la connaissance d'un potentiel déséquilibre radioactif. De façon encore simplifiée par rapport à ce qui a été présenté précédemment, cette méthode repose sur la mesure de seulement deux plages énergétiques  $I_1$  et  $I_2$  grâce à un portique équipé d'un détecteur NaI 3" x 3" (76 mm x 76 mm) :

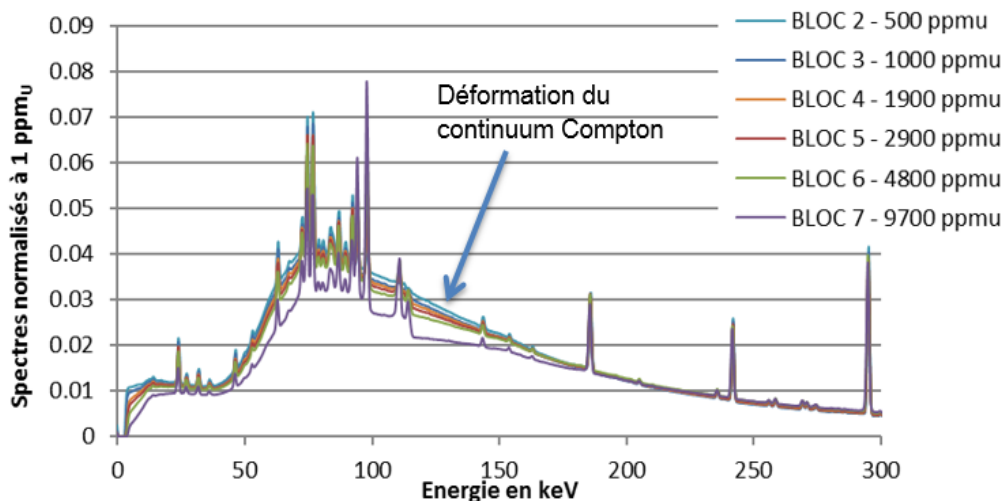
- $I_1 = [100 \text{ keV} ; 133 \text{ keV}]$
- $I_2 = [300 \text{ keV} ; 700 \text{ keV}]$



**Figure 22 : Zones d'énergie  $I_1$  et  $I_2$  pour un spectre de minerai d'uranium. Les sources additionnelles ont pour but une calibration énergétique du système de mesures [37].**

L'uranium est un élément lourd ( $Z=92$ ) et sa présence dans la roche déforme le spectre à cause de l'auto-absorption par effet photoélectrique, principalement à basse énergie (zone  $I_1$ ). La zone  $I_2$  reste relativement stable car les rayonnements  $\gamma$  interagissent principalement par effet Compton avec la matière. Dès lors on peut définir un facteur de déformation du spectre  $P = I_2/I_1$  qui dépend de la teneur en uranium.

Remarque : cette méthode n'est valable que sur des échantillons de forte teneur en uranium afin d'apprécier au mieux la déformation du spectre. Pour exemple, la déformation des spectres n'est visible qu'à partir de 1 000 ppm<sub>U</sub> sur les blocs étalon de Bessines (Figure 23 réalisée avec un détecteur germanium).



**Figure 23 : Déformation du continuum Compton observé sur les spectres des blocs étalons de Bessines normalisés à 1 ppm<sub>U</sub>**

Notons que cette méthode repose sur la mesure d'un minerai homogène et considéré comme un milieu infini. De ce fait, lors du chargement du camion, les pelletées doivent être homogénéisées au maximum. De plus, cette méthode n'est valable que sur des géométries où l'effet Compton dans l'échantillon est significatif, donc dans des échantillons suffisamment volumineux. On notera ainsi sa difficulté d'application sur des échantillons de faible volume, le ratio  $P = I_2/I_1$  restant de ce fait relativement constant (à

déséquilibre U/Ra fixe). Cette méthode semble valable pour des diagraphies uranifères passives comme le montre la Figure 24 qui représente les spectres obtenus en insérant un détecteur NaI à l'intérieur d'un puits de forage [39].

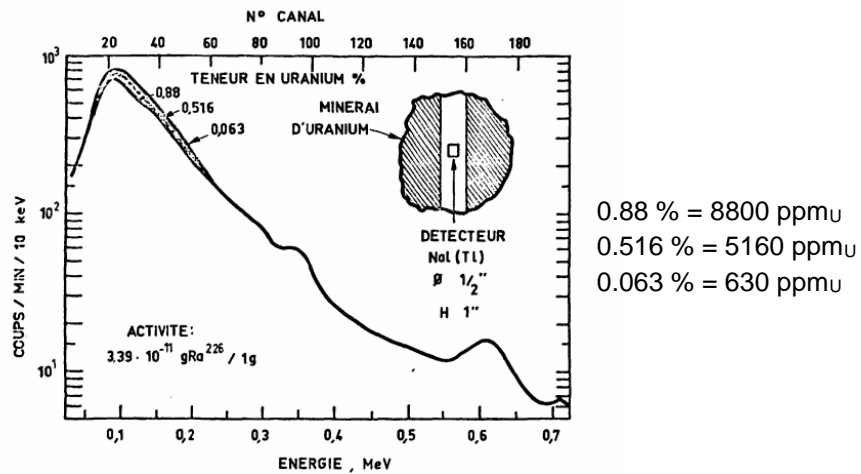


Figure 24 : Spectres de radiographie avec un détecteur NaI, normalisés à 1 ppmU [39]

## I.4 Fluorescence X

### I.4.1 Principe de la fluorescence X

Les raies de fluorescence X proviennent d'un réarrangement du cortège électronique d'un atome. Les électrons d'un atome occupent des niveaux d'énergie quantifiés K, L<sub>1</sub>, L<sub>2</sub>, L<sub>3</sub>, M<sub>1</sub> à M<sub>5</sub>, N<sub>1</sub> à N<sub>7</sub> ... Il existe donc des énergies seuils pour lesquelles il est possible d'éjecter un électron d'une couche du cortège électronique. Le réarrangement de ce cortège est ainsi accompagné de l'émission de rayons X. On appelle K<sub>α1</sub> la transition L<sub>3</sub> vers K, K<sub>α2</sub> la transition L<sub>2</sub> vers K, K<sub>β1</sub> la transition M<sub>3</sub> vers K, K<sub>β2</sub> celle de M<sub>2</sub> vers K, les notations L<sub>αi</sub> et L<sub>βi</sub> se référant aux transitions d'une sous couche de la couche M vers une sous couche de la couche L. Notons qu'il existe plusieurs phénomènes conduisant à l'éjection d'un électron d'une sous couche atomique comme la capture électronique (désintégration ε<sup>+</sup>) et la conversion interne (désexcitation électromagnétique du noyau) donnant lieu à l'émission d'un rayon X.

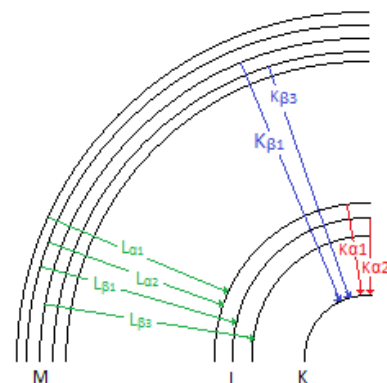


Figure 25 : Nomenclature des transitions électroniques.

Par ailleurs, des noyaux radioactifs peuvent émettre des rayonnements gamma eux aussi susceptibles de créer des lacunes électroniques. Prenons l'exemple de la chaîne de filiation de l'uranium : le <sup>214</sup>Bi et le <sup>214</sup>Pb émettent des rayonnements gamma qui peuvent, après diffusion Compton, éjecter par effet photoélectrique un électron d'une couche de l'<sup>238</sup>U, entraînant aussi l'émission de rayons X suite au réarrangement du cortège électronique. Ce phénomène d'excitation extérieure au noyau est la « fluorescence X ».

### I.4.2 Analyseur à fluorescence X

La fluorescence X est utilisée par les prospecteurs minier in situ sur le minerai. L'analyseur à fluorescence X utilisé permet d'exciter les premiers millimètres de la matière grâce à un tube X d'énergie voisine de 50 keV. Dès lors, seules les raies X de transition L de l'uranium (inférieur à 17 keV) sont observées. Ces

rayons X sont ensuite analysés grâce à un détecteur semi-conducteur au silicium (SDD, Si-PIN) connecté à une chaîne numérique de type DSP (Digital Signal Processor).

**Remarque :** Un détecteur Si-PIN repose sur un silicium refroidi à l'azote liquide (ou par effet Peltier), compris entre deux plans servant d'anode et de cathode. Un champ électrique est introduit entre l'anode et la cathode pour collecter les paires électrons-trous créées lors du passage d'un rayon X par ionisation dans le cristal, ce qui génère une impulsion de courant dont l'amplitude est proportionnelle à l'énergie du rayon X (même principe que pour le détecteur GeHP – voir annexe A.1).

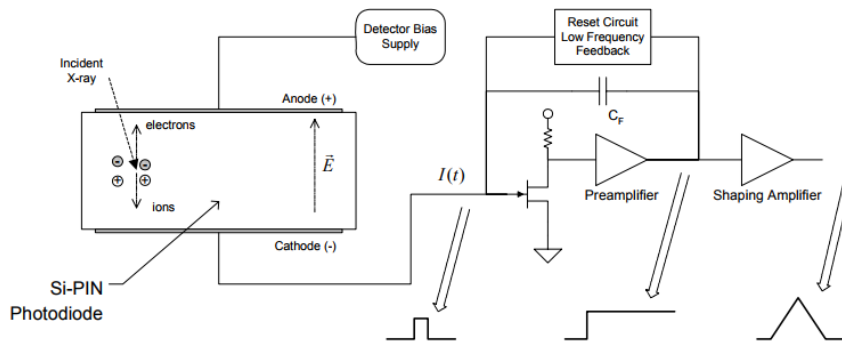


Figure 26 : Principe de fonctionnement d'un détecteur Si-PIN [40]

Le détecteur SDD est différent du détecteur Si-PIN par la taille de l'anode, beaucoup plus petite et située au centre d'une des faces du cristal. Tout autour de l'anode, des électrodes de forme annulaire sont placées afin de modifier les lignes de champ dans le cristal et diminuer ainsi le trajet des électrons et des trous dans le milieu ce qui aura pour conséquence une meilleure résolution du détecteur. Des mesures réalisées sur un Si-PIN de 6 mm<sup>2</sup> et un SDD de 7 mm<sup>2</sup> ont permis de montrer qu'à 5.9 keV, un SDD présente une résolution d'environ 152 eV alors que celle du Si-PIN est de l'ordre 195 eV [40].

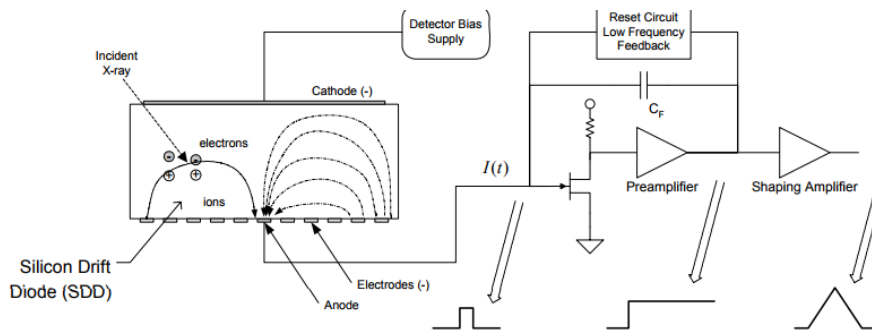


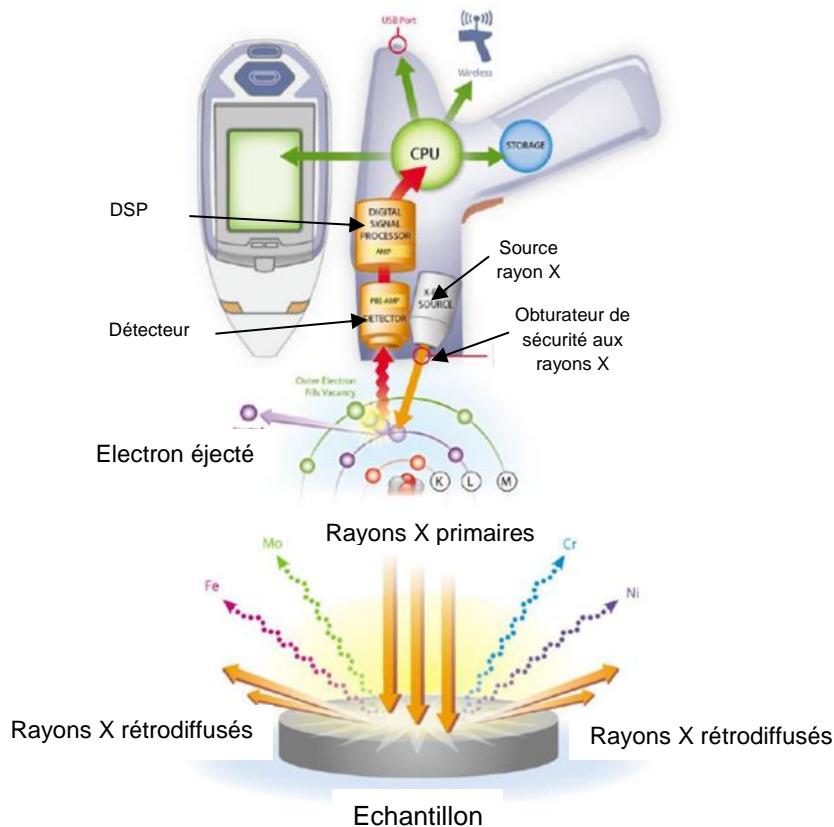
Figure 27 : Principe de fonctionnement d'un détecteur SDD [40]

Cette chaîne de mesure permet d'obtenir le spectre à basse énergie (0-50 keV) de l'échantillon excité par le tube X [41] et d'en déduire les pourcentages massiques des éléments en présence grâce à des courbes d'étalonnages associées aux matériaux traités. Il est à noter que plus l'élément est lourd (numéro atomique Z élevé), plus les limites de détection sont basses. En effet, l'effet photoélectrique est approximativement proportionnel à  $Z^{4.5}$ . Pour exemple, le modèle XL2 GOLD de la société Thermo Fisher Scientific présente une limite de détection de 10 ppm pour l'uranium alors que pour le potassium celle-ci vaut environ 600 ppm. Les derniers analyseurs à fluorescence X admettent néanmoins des limites de détection plus basse (2 à 3 ppm pour l'uranium et 30 ppm pour le potassium pour le modèle XL3 GOLDD+ de Thermo Fisher Scientific).

Il est ainsi possible de scanner un échantillon pour connaître sa teneur en uranium. Néanmoins, cette mesure n'est que surfacique. En effet, aux énergies étudiées (17 keV maximum pour les raies de

fluorescence  $X_L$  de l'uranium), l'absorption des rayons X dans l'échantillon est importante. On note que 70 % des rayons X de 17 keV sont absorbés dans le premier millimètre d'un échantillon  $SiO_2$  de 1000 ppmu. De plus, la réponse en profondeur d'un analyseur à fluorescence X décroît rapidement en fonction du taux d'humidité contenu dans l'échantillon à cause des phénomènes d'absorption des rayons X à basse énergie dans l'eau.

Les temps d'acquisition sont de l'ordre d'une trentaine de secondes, ce qui en fait un instrument apprécié des géologues qui souhaitent obtenir une mesure rapide d'échantillons issus de sites miniers. Le prix moyen d'un tel détecteur oscille entre 20 k€ et 35 k€ suivant le fournisseur et le type de détecteur utilisé (SDD ou Si-PIN).



**Figure 28 : Schéma explicatif d'une mesure avec analyseur à fluorescence X (XRF) [42]**

## 1.5 Autres technologies

Plusieurs autres méthodes de mesure de la teneur en uranium, qui ne seront pas abordées dans la suite de ce manuscrit, sont répertoriées ici de manière non exhaustive.

### 1.5.1 Mesure par activation ou interrogation neutronique

La mesure par activation neutronique (PGNAA, *Prompt Gamma Neutron Activation Analysis* [43]) peut parfois être utilisée dans les sondes de diagraphie. Elle consiste à détecter les rayonnements  $\gamma$  émis suite à l'activation du minerai par une source neutronique. Ces rayonnements  $\gamma$  prompts sont émis principalement suite à une capture radiative ( $n, \gamma$ ) ou une diffusion inélastique ( $n, n' \gamma$ ) et permettent de caractériser les éléments présents dans la roche (par exemple des éléments légers tels que l'hydrogène, l'oxygène, l'aluminium, le silicium ou encore d'autres éléments tels que le fer ou le cuivre).

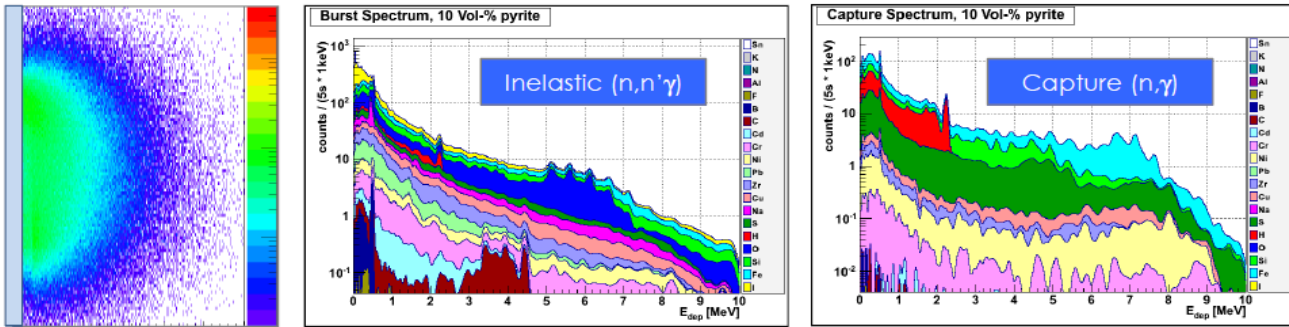


Figure 29 : Spectres simulés lors d'une mesure PGNAA (capture radiative ou diffusion inélastique) [43]

La mesure par interrogation neutronique (PFN : *Prompt Fission Neutron*) repose quant à elle sur la mesure des neutrons prompts de fission émis par  $^{235}\text{U}$  suite à une irradiation neutronique réalisée par un générateur de neutrons pulsé. Les neutrons de fission de  $^{235}\text{U}$  sont thermalisés par le milieu avant d'être mesurés entre les impulsions du générateur. Le principe peut être décrit en trois étapes [44] :

- ❶ Le générateur de neutrons émet des neutrons dits interrogateurs de 14 MeV pendant une durée déterminée. Durant ce laps de temps, aucune mesure ne peut être réalisée car les neutrons prompts émis par la fission de l'uranium sont noyés dans le flux interrogateur.
- ❷ Les neutrons interrogateurs sont thermalisés dans la roche et entraînent la fission des noyaux d'atomes d' $^{235}\text{U}$  présents. Les neutrons prompts issus de la fission de  $^{235}\text{U}$  ont une énergie d'environ 2 MeV.

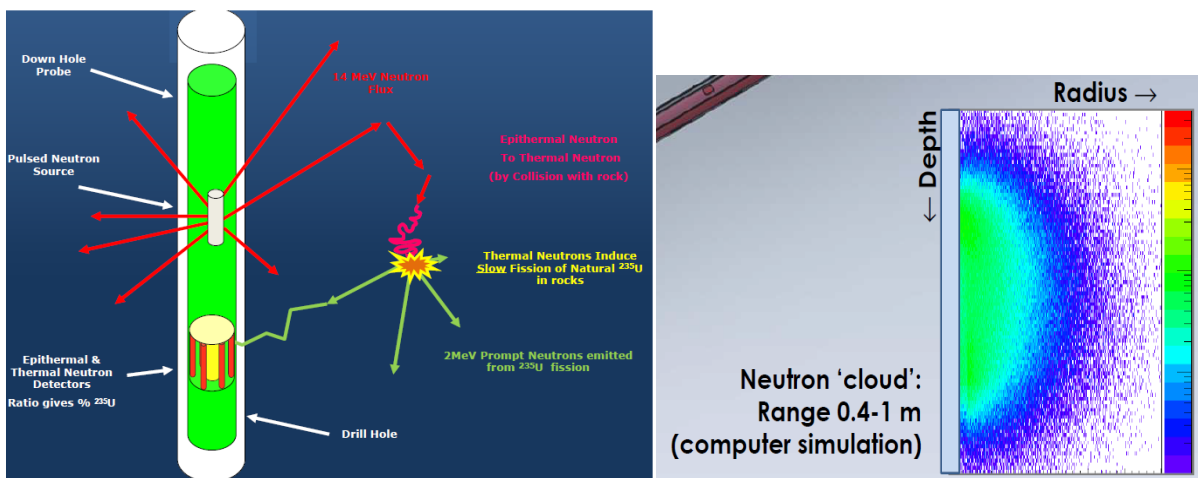


Figure 30 : Principe de mesure par interrogation neutronique [45] et simulation numérique Monte Carlo du « nuage neutronique » autour de la source d'émission neutronique [43]

❸ Quelque temps après l'impulsion du générateur, les neutrons interrogateurs sont essentiellement thermiques et il devient alors possible de différencier ceux-ci des neutrons prompts de fission de  $^{235}\text{U}$ . Pour ce faire, on utilise des matériaux neutrophages tels que du cadmium ou du bore afin d'absorber les neutrons thermiques interrogateurs. Les neutrons prompts de fission étant rapides, ne sont pas absorbés et sont ensuite thermalisés dans du polyéthylène et mesurés grâce à un compteur à  $^3\text{He}$ , voir Figure 31. Des détecteurs à neutrons thermiques ( $\text{BF}_3$ ) sont aussi utilisés afin de mesurer le flux dans de neutrons interrogateur émis par le générateur de neutrons. Une normalisation du signal épithermique (issus des fissions induites dans l'uranium) par le signal thermique (flux interrogateur) permet de remonter à la teneur en uranium de la roche.



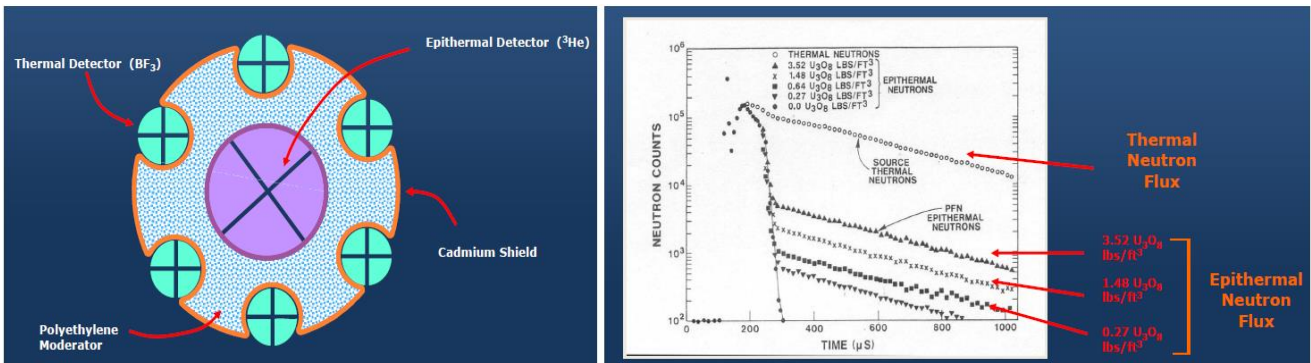


Figure 31 : A gauche, un schéma explication des détecteurs utilisés pour la mesure par interrogation neutronique. A droite, un graphique montrant l'évolution du flux de neutrons thermiques et épithermiques en fonction du temps pendant et après les impulsions du générateur qui s'étendent de 0 à 200  $\mu$ s environ [45]

Par ailleurs, une analyse des neutrons rétrodiffusés, par exemple via une comparaison de l'intensité neutronique au centre et à la périphérie du « nuage » neutronique interrogateur, permet de corriger des effets de densité, de porosité ou de perméabilité du milieu [46].

Ces deux méthodes peuvent être implémentées dans une unique sonde et couplées avec une spectrométrie gamma passive classique pour les mesures in-situ dans des puits de forage. En associant toutes les données obtenues par PGNA et PFN, les géologues peuvent connaître la teneur en uranium, la perméabilité et les principaux éléments présents dans le milieu ce qui permet de tracer une cartographie complète en profondeur du puits de forage.

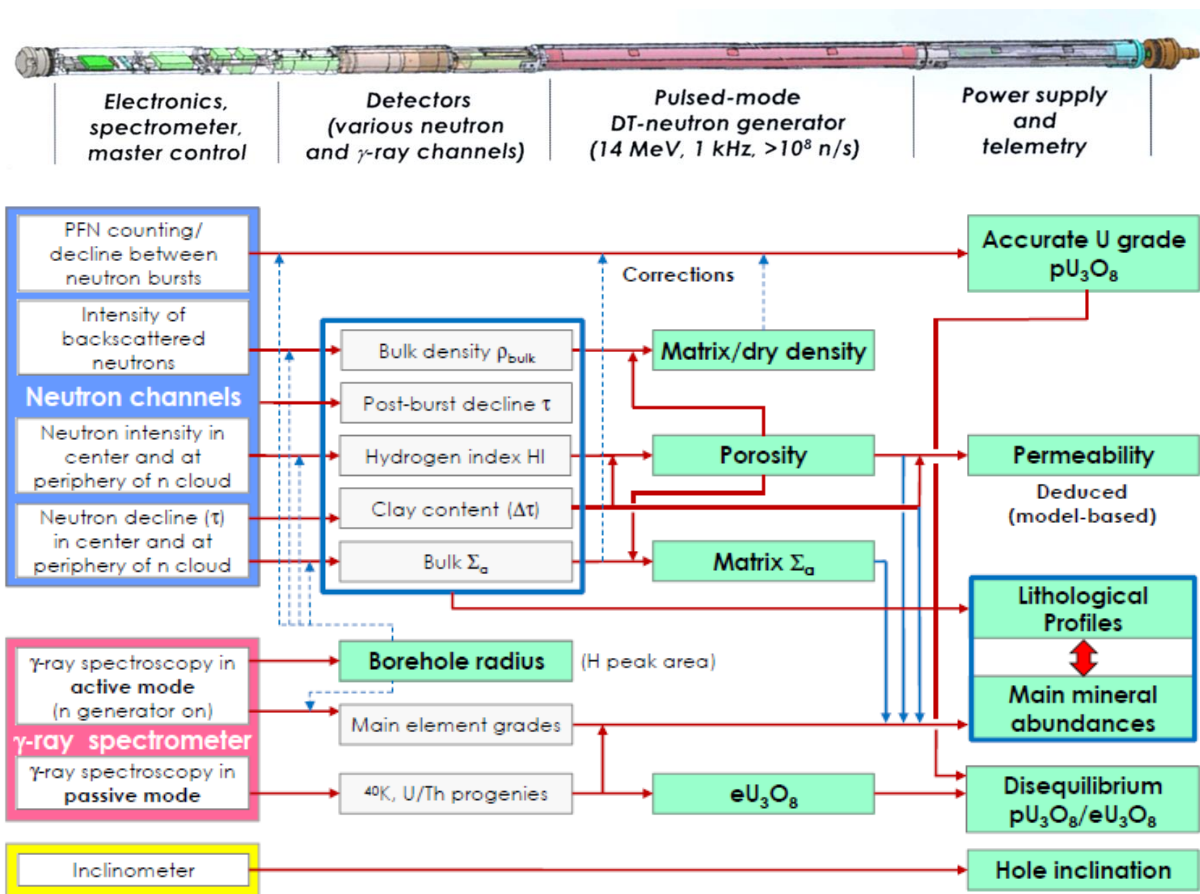
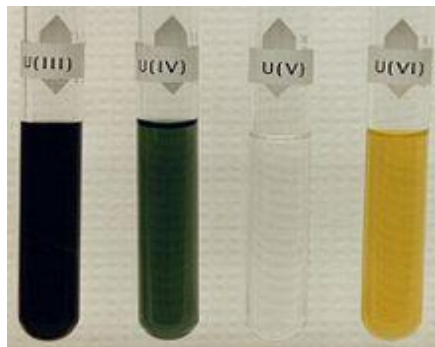


Figure 32 : En haut, une sonde radiométrique par activation neutronique (PGNA) et par neutrons prompts de fission (PFN) –En bas, un schéma et principe du procédé qui inclut aussi des mesures de densité, porosité, hydrogène, etc. [43].

## 1.5.2 Spectrophotométrie

La spectrophotométrie est principalement utilisée sur les mesures en ligne sur tuyauterie. Elle repose sur la mesure de l'intensité d'un faisceau lumineux traversant l'échantillon généralement sous forme de solution. Connaissant l'intensité  $I_0$  du faisceau entrant dans l'échantillon et en mesurant l'intensité sortante  $I$ , on peut mesurer son absorbance  $A$  définie par  $A = \log\left(\frac{I_0}{I}\right)$  qui est liée à la teneur en uranium. La mesure de l'absorbance du milieu dans les lignes de tuyauterie permet de suivre en temps réel la phase de valorisation du minerai. Un des attraits de cette méthode réside en la mesure de la valence de l'uranium, U(VI) et U(IV), qui représente un enjeu majeur lors de cette phase. En effet, l'uranium possède une chimie complexe, constitué de 4 états de valence dont deux sont majoritaires : U(IV) qui est facilement oxydable et U(VI) représentant l'état le plus stable et le plus mobile. La connaissance de ces différentes formes d'oxydation permet de mieux valoriser le minerai lors de la phase de transformation en *Yellow cake* (ajout ou non de solvant, temps de lixiviation, températures de traitements).



**Figure 33 : Sel d'uranium en solution aqueuse : les 4 valences de l'uranium**

**Remarque :** La valence d'un élément chimique représente le nombre maximal de liaisons covalentes ou ioniques que celui-ci peut réaliser avec le milieu. Dans le cas de la valence +IV, l'uranium forme un ion  $UO_2^+$  instable comportant 4 liaisons chimiques avec l'oxygène et qui est peu soluble. Dans le cas +VI, celui-ci forme un ion plus stable  $UO_2^{2+}$  et de couleur jaune (qui donne son nom au Yellow Cake) de 6 liaisons chimiques avec l'oxygène.

## 1.5.3 ICP-MS

La spectrométrie de masse à plasma à couplage inductif (ou ICP-MS : Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry) permet elle aussi d'obtenir la teneur en uranium d'un échantillon. Elle consiste à ioniser l'échantillon par une torche à plasma et à réaliser une spectrométrie de masse sur les ions issus de l'échantillon. Un champ magnétique permet de séparer les ions suivant leur rapport masse sur charge ( $m/Z$ ). La trajectoire de l'ion sortant de l'échantillon dépendant de ce rapport, ce qui permet de quantifier les différents isotopes présents dans l'échantillon. Ces mesures sont très précises ( $10^{-3}$  ppm) mais difficilement réalisables sur site car elles nécessitent un matériel de mesure lourd et une préparation difficile des échantillons.

**Remarque :** Lors de la thèse, les différents teneurs de référence des minerai mis à disposition au Laboratoire de Mesures Nucléaires ont été mesurée par ORANO par ICP-MS.

## 1.5.4 Spectrométrie alpha

La spectrométrie  $\alpha$  est intéressante pour la prospection minière d'uranium car de nombreux radioéléments des différentes chaînes de désintégration émettent ce type de rayonnements (voir Figure 8). Cependant, les particules  $\alpha$  ont un trajet très court dans la matière et nécessitent que l'uranium soit au contact du milieu de détection ou de faire le vide entre l'uranium et le détecteur. Une première méthode basée sur la



dissolution du minerai dans un liquide scintillant permet de mesurer l'énergie des rayonnements  $\alpha$  déposée pendant leur trajet, laquelle provoque la scintillation du liquide. Le nombre de photons lumineux mesuré avec un scintillateur est proportionnel au dépôt d'énergie des particules  $\alpha$ . La deuxième méthode consiste à utiliser un semi-conducteur en silicium de faible volume et nécessite de faire le vide entre l'échantillon et le détecteur. L'utilisation sur site est donc difficilement envisageable car elle nécessite une préparation des échantillons et une instrumentation complexe.

## I.6 Conclusion et apport de la thèse

### I.6.1 Mesures réalisées à la station d'étalonnage radiométrique de Bessines (ORANO)

Une campagne de mesures a été réalisée par le Laboratoire de Mesures Nucléaires à la station d'étalonnage radiométrique de Bessines. Celle-ci a révélé de nombreuses informations susceptibles de permettre l'amélioration des techniques de prospection qui sont abordées au § I.6.2.

Cette campagne a été menée avec trois détecteurs sur 7 blocs étalons de teneur en uranium croissante (numéro de B1 à B7) : un détecteur germanium coaxial, un détecteur germanium planaire (modèle BEGe) et enfin un détecteur LaBr<sub>3</sub> (voir Figure 34).



**Figure 34 : Photographies du détecteur coaxial (à gauche), du détecteur BEGe (au centre) et du détecteur LaBr<sub>3</sub> (à droite) lors des mesures des blocs étalons à Bessines**

Ces mesures, ont permis de valider les différentes teneurs en uranium (via la raie à 1001 keV du <sup>234m</sup>Pa – voir § I.3.1.3) des 7 blocs étalons représentées dans le Tableau 4 ainsi que l'équilibre séculaire des chaînes de désintégration de l'uranium des différents blocs béton.

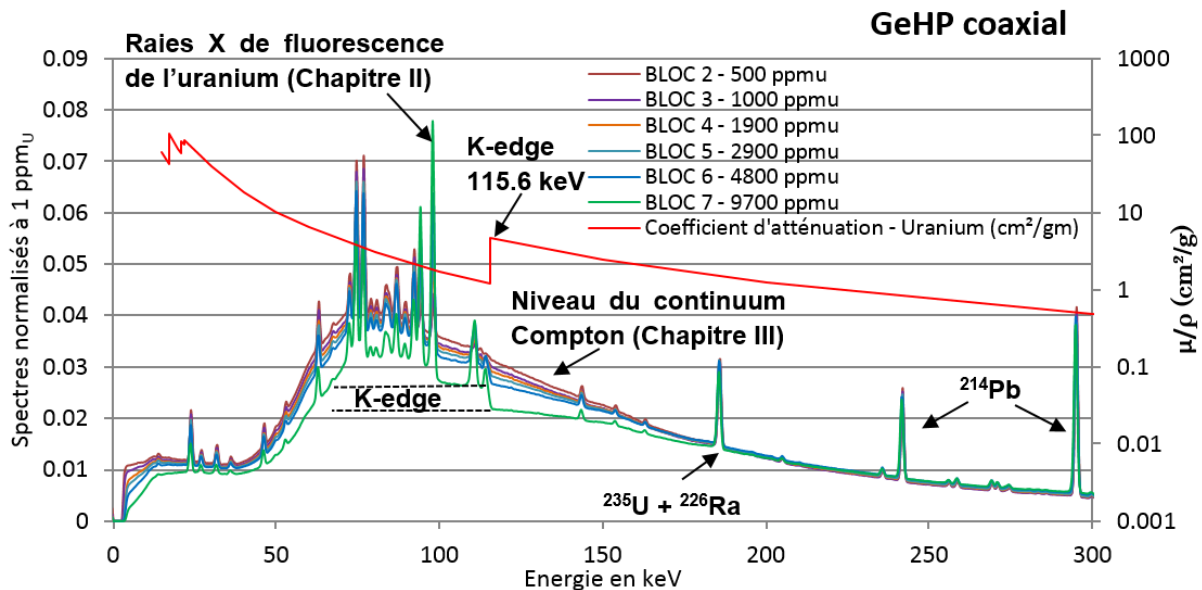
**Tableau 4 : Teneur en uranium des 7 blocs étalons de la station d'étalonnage de Bessines**

| Bloc | Teneur en uranium |      | Masse volumique g/cm <sup>3</sup> |
|------|-------------------|------|-----------------------------------|
|      | %                 | ppm  |                                   |
| B1   | stérile           | 0    | 1,89                              |
| B2   | 0,05              | 500  | 1,92                              |
| B3   | 0,10              | 1000 | 1,89                              |
| B4   | 0,19              | 1900 | 1,91                              |
| B5   | 0,29              | 2900 | 1,92                              |
| B6   | 0,48              | 4800 | 1,93                              |
| B7   | 0,97              | 9700 | 1,92                              |

### I.6.2 Nouvelles informations à exploiter pendant la thèse

L'objectif principal de la thèse est la réduction du temps de mesure par rapport à la raie à 1001 keV usuellement utilisées en spectrométrie gamma haute résolution in situ pour sa robustesse vis-à-vis de la minéralogie, de la densité de l'échantillon et des déséquilibres des chaînes de filiation (voir § I.3.1.2).

Les différentes mesures de spectrométrie gamma menées à la station d'étalonnage radiométrique de Bessines ont permis d'obtenir plusieurs spectres gamma pour différentes teneurs de blocs étalons (voir Figure 35). Ces spectres permettent de visualiser différentes informations dépendant de la teneur en uranium. Dans le cadre de la thèse, on envisagera dans un premier temps l'utilisation des raies gamma et X de basse énergie, très intenses, mais très sensibles en termes d'atténuation aux caractéristiques de l'échantillon (minéralogie, densité, hétérogénéité...) à 92 keV et 98 keV (Chapitre II). Dans un second temps, on s'interrogera sur la possibilité d'utiliser la déformation du continuum Compton comme indicateur de la teneur en uranium. On observera que cette déformation peut provenir d'une absorption accrue à haute teneur ou d'un déséquilibre entre le haut et le bas des chaînes de filiation de l'uranium (Chapitre III).



**Figure 35 :** Spectres mesurés grâce à un détecteur GeHP coaxial des blocs étalons de Bessines normalisés à 1 ppmU. Différentes informations relatives à la teneur en uranium seront étudiées lors de la thèse et sont annotées dans cette figure telles que la déformation du continuum Compton ou encore les raies X de fluorescence de l'uranium.

**Remarque :** La discontinuité du coefficient d'atténuation de l'uranium présent à 115.6 keV (voir Figure 35), appelée aussi discontinuité K ou K-edge, peut être une autre méthode de caractérisation de l'uranium. En effet, elle se traduit par une marche à cette même énergie dans les spectres dont l'amplitude dépend de la teneur en uranium. Cette information n'est cependant pas observable sur les spectres des échantillons de minerai d'uranium étudiés lors de la thèse car ils ont un volume insuffisant. L'utilisation de cette discontinuité pourrait néanmoins faire l'objet de futures recherches dans des puits de forage utilisant du matériel spectroscopique de haute résolution (qui n'est pas encore mis en place actuellement).

### 1.6.3 Récapitulatif des détecteurs et des méthodes utilisés

Nous avons observé, à la lumière de ce chapitre, que les méthodes de mesure de la teneur en uranium sont très variées suivant le type d'émission (X,  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  ou neutron, induite ou spontanée) et suivant la mesure réalisée : aéroportée, en puits de forage, sur des échantillons ou carottes, sur des bandes convoyeurs de minerai ou encore en ligne sur des tuyauteries. Le Tableau 5 récapitule les technologies abordées, leurs avantages et inconvénients, et le contexte dans lesquels elles sont utilisées.

Les travaux de thèse se focaliseront sur la spectrométrie gamma de haute et basse résolution, principalement sur des échantillons concassés de minerai. **La thèse sera axée sur la recherche de méthodes passives, applicables in situ, plus rapides que les méthodes actuelles présentées dans cet état de l'art et néanmoins suffisamment précises.**

**Tableau 5 : Méthodes de mesure dans l'industrie d'extraction de l'uranium**

| Méthodes  | Détecteurs ou instruments utilisés  | Éléments détectés   | Applications (réalisées ou potentielles)  | Avantages   | Inconvénients   |
|---|---|---|---|---|---|
| <b>Taux de comptage total</b>                             | Scintillateur inorganique (NaI, LaBr <sub>3</sub> )<br>Geiger-Müller      | $\gamma$ , $\beta$ , $\alpha$ des différentes chaînes de filiation  | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Puits de forage</li> <li>• Echantillons</li> <li>• Carottes</li> <li>• Aériennes</li> <li>• Bande convoyeuses</li> <li>• Camions</li> </ul>                | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Temps de comptage faible</li> <li>• Robustesse (utilisation en puits de forage)</li> </ul>   | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Ne tient pas en compte des déséquilibres potentiels des chaînes de filiation</li> <li>• Impossible de savoir si on mesure de l'uranium ou un autre élément radioactif (Th, K)</li> </ul>   |
| <b>Méthode Thommeret</b>                                  | Geiger-Müller<br>Ou sonde NaI (gamma) et détecteur plastique (beta-gamma) | Taux de comptage total ( $\gamma+\beta$ )<br>Taux de comptage total $\gamma$  | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Echantillons</li> </ul>  | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Temps de comptage faible</li> <li>• Quantification du déséquilibre</li> </ul>  | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Nécessité de travailler sur un échantillon finement broyé et sans présence de thorium.</li> <li>• Mesures sur des échantillons de faible volume (&lt; 100 g)</li> </ul>  |
| <b>Spectrométrie <math>\gamma</math> haute résolution</b> | Semi-conducteur Germanium (GeHP)  | $\gamma$ et X des chaînes de l' <sup>238</sup> U, de l' <sup>235</sup> U, du <sup>232</sup> Th et <sup>40</sup> K   | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Echantillons</li> <li>• Carottes</li> </ul>  | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Très bonne résolution : plusieurs nucléides peuvent être analysés sur un même spectre</li> <li>• Mesure du déséquilibre des chaînes de filiation</li> </ul>          | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Très bonne résolution.</li> <li>• Prix du détecteur élevé (quelques dizaines de milliers d'euros)</li> <li>• Temps de comptage relativement long à basse teneur car l'<sup>238</sup>U est mesuré via le <sup>234m</sup>Pa (rayonnements <math>\gamma</math> de faible intensité)</li> <li>• Détecteur volumineux (système de refroidissement)</li> <li>• Les raies de l'<sup>235</sup>U sont à déconvoluer des raies de l'<sup>238</sup>U</li> </ul> |
| <b>Spectrométrie <math>\gamma</math> basse résolution</b> | Scintillateur inorganique (NaI, LaBr <sub>3</sub> )                       | $\gamma$ et X des chaînes de l' <sup>238</sup> U, de l' <sup>235</sup> U, du <sup>232</sup> Th et <sup>40</sup> K<br>Mesure principalement le signal Compton induit par les rayonnements $\gamma$ | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Puits de forage</li> <li>• Echantillons</li> <li>• Carottes</li> <li>• Aériennes</li> <li>• Bandes convoyeuses</li> <li>• Portique pour camions</li> </ul> | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Prix du détecteur faible (quelques milliers d'euros)</li> <li>• Dimension du cristal importante : meilleure efficacité de détection</li> <li>• Robustesse</li> </ul> | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Mauvaise résolution</li> <li>• Non représentatif de la teneur en uranium si un déséquilibre est présent dans les chaînes de filiation</li> <li>• Seules les raies du <sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi et <sup>208</sup>Tl sont identifiables dans les spectres</li> </ul>  |

| Méthodes                                       | Détecteurs ou instruments utilisés                             | Éléments détectés  | Applications (réalisées ou potentielles)  | Avantages  | Inconvénients   |
|--|--|--|---|--|---|
| <b>Fluorescence X</b>                          | Analyseur à fluorescence X (tube X et détecteur Si)            | Raies X à basse énergies<br>0 à 30 keV                                 | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Sols</li> <li>• Echantillons</li> </ul>  | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Rapidité de la mesure</li> <li>• Mesure directe de la teneur en uranium et d'autres éléments en présence</li> </ul>   | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Très faible épaisseur de mesure (millimètre)</li> </ul>  |
| <b>Activation ou interrogation neutronique</b> | Source ou générateur de neutrons et détecteur Germanium (GeHP) | Mesure des rayonnements gamma prompts d'activation neutronique (PGNAA) | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Puits de forage</li> <li>• Carottes</li> <li>• Echantillons</li> <li>• Bandes convoyeuses</li> </ul> | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Robustesse (utilisation dans des puits de forage)</li> <li>• Identification des différents éléments chimiques en présence (H, O, Si, Al...)</li> <li>• Mesures pénétrantes dans la roche</li> </ul> | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Temps de mesure conséquents</li> <li>• Activation potentielle du minerai (faible niveau)</li> <li>• Mesures complexes (autorisations, opérateurs qualifiées...)</li> </ul> |
|  |  | Mesure des neutrons prompts de fission (PFN)                           |   | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Robustesse (utilisation dans des puits de forage)</li> <li>• Mesure de la teneur en <sup>235</sup>U</li> </ul>  |   |
| <b>Spectrophotométrie</b>                      | Spectrophotomètre optique                                      | U(VI) et U(IV) et teneur en uranium                                    | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Mesure de liquide en cruchon ou sur dérivation procédé</li> </ul>                                    | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Mesure de la valence U(VI) et U(IV)</li> </ul>  | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Méthode destructive dans le cas de l'échantillon dilué en solution</li> </ul>  |
| <b>Spectrométrie α</b>                         | Spectromètre α   | <sup>238</sup> U, <sup>234</sup> U, <sup>235</sup> U                   | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Echantillons (laboratoire) sous vide ou en solution</li> </ul>                                       | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Forte émission α du minerai</li> </ul>  | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Faible trajet des α - Echantillon sous vide</li> <li>• Méthode destructive dans le cas d'un ajout d'additif fluorescent</li> </ul>   |
| <b>ICP-MS</b>                                  | Spectre de masse   | <sup>238</sup> U, <sup>234</sup> U, <sup>235</sup> U                   | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Echantillons (laboratoire)</li> </ul>  | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Grandes précision et sensibilité</li> </ul>   | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Coût, complexité de l'appareil, préparation des échantillons</li> <li>• Réservé au laboratoire</li> </ul>  |



# **Chapitre II :**

## *Nouvelles méthodes de spectrométrie gamma haute résolution*



## II.1 Introduction

Les méthodes actuelles en spectrométrie gamma pour obtenir la teneur en uranium d'un échantillon de minerai se basent principalement sur deux estimateurs :

- Le taux de comptage gamma total, composé en grande partie des raies émises par le  $^{214}\text{Pb}$  et le  $^{214}\text{Bi}$  (environ 90 % du signal total) situés en fin de chaîne de l' $^{238}\text{U}$ , qui permet des temps d'acquisition faibles mais est soumis aux déséquilibres potentiels de cette chaîne de filiation.
- La raie émise par le  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  à 1001 keV. Située en haut de chaîne de filiation de l' $^{238}\text{U}$ , le  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  n'est pas soumis aux déséquilibres potentiels des chaînes de filiation en présence. De plus, grâce à son énergie relativement élevée, cette raie n'est que peu influencée par la minéralogie de l'échantillon. La présence de pépites d'uranium, insuffisamment concassées, ne jouera pas non plus un rôle important sur les résultats de mesure (faible auto-absorption à cette énergie). Cependant son intensité d'émission (0.83 %) est faible et nécessite des temps d'acquisition de plusieurs heures.

L'objectif de ce chapitre est d'étudier de nouvelles méthodes de spectrométrie gamma haute résolution pour la prospection de l'uranium reposant sur la mesure de nouveaux indicateurs de la teneur en uranium, à savoir la raie à 92 keV composée d'émissions gamma du  $^{234}\text{Th}$  et de l' $^{235}\text{U}$  et la raie à 98 keV composée essentiellement d'une émission X d'auto-fluorescence de l'uranium suite à sa transition  $K_{\alpha 1}$  et une émission gamma du  $^{234\text{m}}\text{Pa}$ . Les études sont effectuées pour des échantillons de minerai préalablement concassés et disposés dans un porte échantillon en PVC. Les spectres gamma sont mesurés avec un détecteur Falcon 5000 qui comprend un cristal planaire de germanium de 3 cm de rayon et 3 cm d'épaisseur (modèle BEGE 2830). Les nouvelles méthodes sont d'abord étudiées, simulations numériques à l'appui, avec des données expérimentales obtenues par ORANO Mining lors d'une campagne de mesures destinée à caractériser 75 échantillons avec la raie à 1001 keV. Puis elles sont validées expérimentalement au Laboratoire de Mesures Nucléaires avec 38 échantillons supplémentaires mis à disposition par ORANO Mining.

Les raies à 92 keV et 98 keV sont présentes systématiquement avec une grande intensité sur les spectres de minerai d'uranium, ce qui permet d'envisager **une réduction significative des durées de mesure**. Nous vérifierons que ces estimateurs de la teneur en uranium ne dépendent pas du déséquilibre potentiel des chaînes de filiation de l'uranium et étudierons par simulation numérique leur sensibilité aux caractéristiques de l'échantillon analysé (hauteur, densité, teneur en uranium, hétérogénéités potentielles), en vue d'effectuer les corrections appropriées lors de l'analyse des spectres expérimentaux. Grâce à cette étude, une nouvelle méthode de détection d'hétérogénéité couplant ces deux indicateurs sera mise au point. En effet, on montrera qu'ils ne conduisent pas à la même teneur en uranium en cas d'hétérogénéité de l'échantillon.

## II.2 Géométrie de mesure de référence

Afin d'étudier de nouvelles méthodes de spectrométrie gamma haute résolution pour la prospection de l'uranium, une géométrie de mesure « type » a été modélisée avec le code de transport Monte-Carlo MCNP6 [21] pour un échantillon de minerai d'uranium standard. Cette géométrie de mesure permettra d'étudier la sensibilité des différents indicateurs de la teneur en uranium aux caractéristiques géométriques de l'échantillon (densité, hauteur, teneur en uranium, hétérogénéités potentielles). Les coefficients estimés par simulation numérique et présentés dans la suite de ce chapitre, sont entachés d'une incertitude statistique relative de calcul MCNP inférieure au pourcent. Cette incertitude liée à la simulation numérique, sera négligée lors de l'étude sur l'incertitude totale de la mesure présentée dans le § II.7.



## II.2.1 Modélisation du détecteur Falcon et de la scène de mesure

La géométrie de mesure se base sur une étude réalisée par ORANO Mining sur plus de 70 échantillons afin de quantifier leur teneur avec la raie à 1001 keV [7]. Celle-ci montre que les échantillons concassés possèdent en moyenne une densité de **1.4** prise comme densité de l'échantillon « type » dans les simulations. La hauteur de remplissage de l'échantillon est de **60 mm** pour un diamètre du porte échantillon de **110 mm**. La teneur en uranium de l'échantillon « type » est de **1 000 ppm<sub>U</sub>** et sa minéralogie est du **SiO<sub>2</sub>**. L'échantillon repose sur des cales en PVC de hauteur variable afin de s'assurer de l'affleurement entre le capot du détecteur et l'échantillon. Il est entouré de briques de plomb de 5 cm d'épaisseur pour atténuer le bruit de fond provenant de la pièce. L'échantillon est entouré de cuivre afin d'absorber les raies X de fluorescence du plomb (72.8042 keV, 74.9694 keV et 84.936 keV). Le détecteur utilisé est un détecteur Falcon 5000 [16]. Son cristal (modèle BEGE 2830) a pour dimensions 60 mm de diamètre et 30 mm d'épaisseur. Cette géométrie a donc été simulée avec le code de transport Monte-Carlo MCNP6 (voir modèle en Figure 36) à l'aide d'un schéma de calcul préalablement validé grâce à des résultats expérimentaux obtenus par le LMN à la station d'étalonnage de Bessines [17].

**Remarque :** La géométrie simulée du détecteur Falcon 5000 se base initialement sur les données constructeurs. Elle sera par la suite améliorée aux vues de diminuer les incertitudes liées à sa modélisation (§ II.6.2).

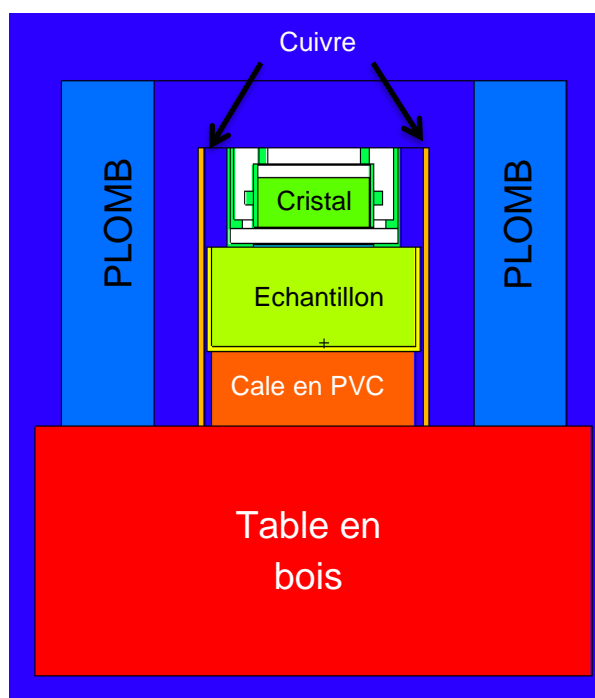


Figure 36 : Modèle MCNP de la mesure d'un échantillon "type".

La source simulée prend place dans le volume de l'échantillon. Elle tient compte de toutes les émissions gamma et X des nucléides présents dans la chaîne de filiation de  $^{238}\text{U}$  et de  $^{235}\text{U}$ . Des études spectrales ont pu être menées sur cette géométrie en utilisant le « tally F8 » qui permet d'estimer les dépôts d'énergie dans le cristal de germanium. Le spectre obtenu de l'échantillon « type » est représenté sur la Figure 37. On remarque la présence de nombreuses raies du  $^{214}\text{Pb}$  et du  $^{214}\text{Bi}$ . Dans le cadre de ce chapitre, nous nous intéresserons par la suite plus précisément à deux raies peu ou pas utilisées jusqu'à présent en prospection de l'uranium : la raie à 98 keV et la raie à 92 keV décrites dans les parties suivantes (§ II.3 et § II.4).

**Remarque :** La raie à 98 keV étant composée d'une émission X de fluorescence de l'uranium (transition  $K_{\alpha 1}$ ), il est aussi nécessaire d'étudier toutes les autres raies présentes dans le spectre afin de quantifier le terme source de fluorescence (§ II.4.2).

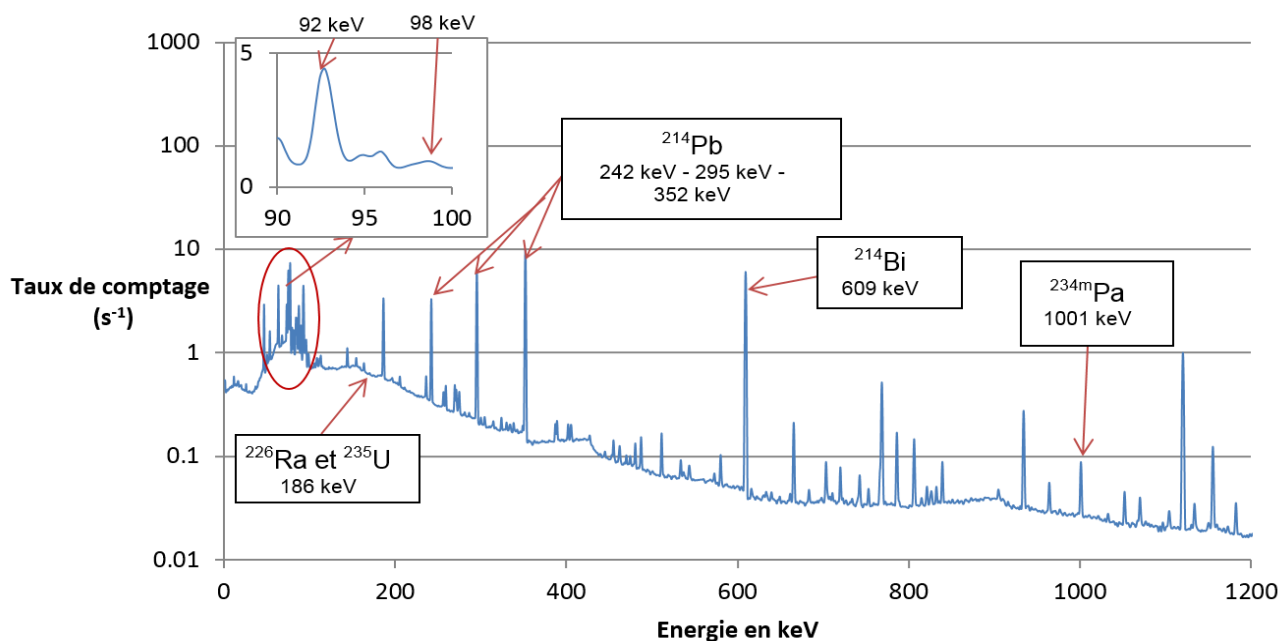


Figure 37 : Spectre MCNP de la mesure d'un échantillon "type".

A titre de rappel, la formule reliant la teneur en uranium d'un échantillon (décrite dans le chapitre I) et l'aire nette de la raie à 1001 keV est la suivante :

$$Cm_u(1001 \text{ keV}) = \frac{1.0072 \times 10^6 \times M(^{238}_{92}\text{U}) \times T_{\frac{1}{2}}(^{238}_{92}\text{U}) \times [S_n(1001 \text{ keV}) - \text{Bdf}(1001 \text{ keV})]}{\text{Eff}_{1001\text{keV}} \times I_{1001\text{keV}}(^{234m}_{91}\text{Pa}) \times Tc \times M_{ech} \times N_a \times \ln(2)} \quad (\text{Eq. 2.1})$$

Avec:

- $S_n(1001 \text{ keV})$  : nombre de coups dans la raie à 1001 keV (aire nette après soustraction du continuum Compton) lors de la mesure de l'échantillon, qui comprend le nombre de coups du bruit de fond (ci-dessous),
- $\text{Bdf}(1001 \text{ keV})$  : nombre de coups émis dans la raie à 1001 keV lors de la mesure du bruit de fond sans échantillon (aire nette après soustraction du continuum Compton également),
- $\text{Eff}_{1001\text{keV}}$  : efficacité du détecteur à 1001 keV (sans dimension : nombre de coups dans le pic à 1001 keV par photon gamma de 1001 keV émis dans l'échantillon) calculée par simulation (ISOCS ou MCNP) ou déduite d'un étalonnage expérimental (courbe d'efficacité),
- $I_{1001\text{keV}}(^{234m}_{91}\text{Pa})$  : intensité d'émission du  $^{234m}\text{Pa}$  à 1001 keV (nombre de photons émis par désintégration). Sa valeur classiquement utilisée est de  $0.835 \pm 0.004 \%$ ,
- $Tc$  : temps de comptage (en secondes),
- $N_a$  : nombre d'Avogadro ( $6,022 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$ ),
- $M(^{238}_{92}\text{U})$  : masse molaire de l' $^{238}\text{U}$  ( $238,0507 \text{ g.mol}^{-1}$ ),
- $T_{\frac{1}{2}}(^{238}_{92}\text{U})$  : période radioactive de l' $^{238}\text{U}$  ( $4.468 \times 10^9 \text{ ans}$ ),
- $M_{ech}$  : masse de l'échantillon en grammes.

A  $Cm_u$  donnée, l'aire nette de la raie à 1001 keV dépend de la hauteur de remplissage et de la densité de l'échantillon. La densité peut aisément être déduite de la pesée des échantillons et ses variations seront corrigées dans le calcul de l'efficacité du détecteur à 1001 keV avec ISOCS [20] (voir annexe A.4) ou MCNP, qui dépend essentiellement de la hauteur de remplissage et de la densité de l'échantillon.

Afin d'apprécier ces effets sur l'aire nette de la raie à 1001 keV, différentes hauteurs de remplissage de l'échantillon (0 à 6 cm) et différentes densités (1.2, 1.4 et 1.6) ont été simulées. Il est à noter que lorsque la densité augmente, à concentration massique  $Cm_u$  constante, l'activité massique des nucléides en présence augmente aussi, ce qui se répercute par un nombre de coups plus grand dans la raie à 1001 keV.

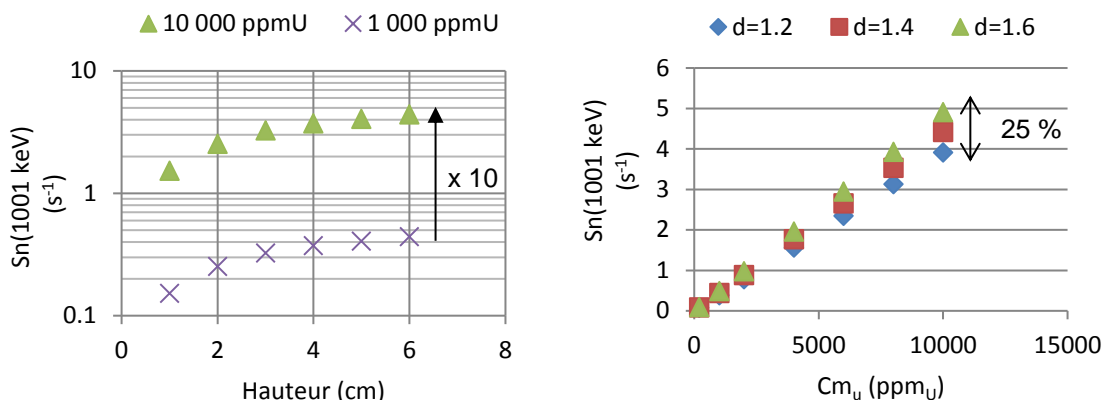


Figure 38 : A gauche, l'effet de la hauteur de remplissage sur le taux de comptage de l'aire nette de la raie à 1001 keV pour une densité de 1.4. A droite, l'effet de la teneur en uranium et de la densité de l'échantillon sur le taux de comptage de l'aire nette de la raie à 1001 keV pour une hauteur de remplissage de 6 cm.

## II.2.2 Coefficient d'étalonnage $CE_{1001}$

Afin d'apprécier les effets d'auto-absorption des rayonnements gamma dans l'échantillon à masse d'uranium constante, nous définissons dans l'équation (Eq. 2.1), un coefficient d'étalonnage  $CE_{1001}$  en  $\text{s}^{-1} \cdot \text{ppm}_U^{-1} \cdot g_{ech}^{-1}$ , c'est-à-dire en  $\text{s}^{-1} \cdot g_U^{-1}$  où  $g_{ech}$  et  $g_U$  sont respectivement les notations des unités des masses de l'échantillon et de l'uranium :

$$CE_{1001} = \frac{Eff_{1001keV} \times I_{1001keV} \left( \frac{^{234m}_{91}Pa \right) \times N_A \times \ln(2)}{1.0072 \times 10^6 \times M \left( \frac{^{238}_{92}U \right) \times T_{1/2} \left( \frac{^{238}_{92}U \right)}{2}} = 1.03 \times 10^{-4} \times Eff_{1001keV} \text{ s}^{-1} \cdot g_U^{-1}$$

Ainsi l'équation (Eq. 2.1) devient :

$$Cm_U = \frac{[S_n(1001 \text{ keV}) - Bdf(1001 \text{ keV})]}{Tc \times M_{ech} \times CE_{1001}}$$

Nous obtenons donc, en négligeant le bruit de fond à 1001 keV qui n'est pas simulé :

$$CE_{1001} = \frac{S_n(1001 \text{ keV})}{Tc \times Cm_U \times M_{ech}}$$

Le tracé de ce coefficient d'étalonnage pour les trois densités étudiées sur la plage 0 à 10 000  $\text{ppm}_U$  (Figure 39) montre un effet limité à quelques pourcents de la densité et une insensibilité à la teneur en uranium qui confirme que cette raie n'est pas soumise aux effets d'auto-absorption causés par la présence d'uranium.

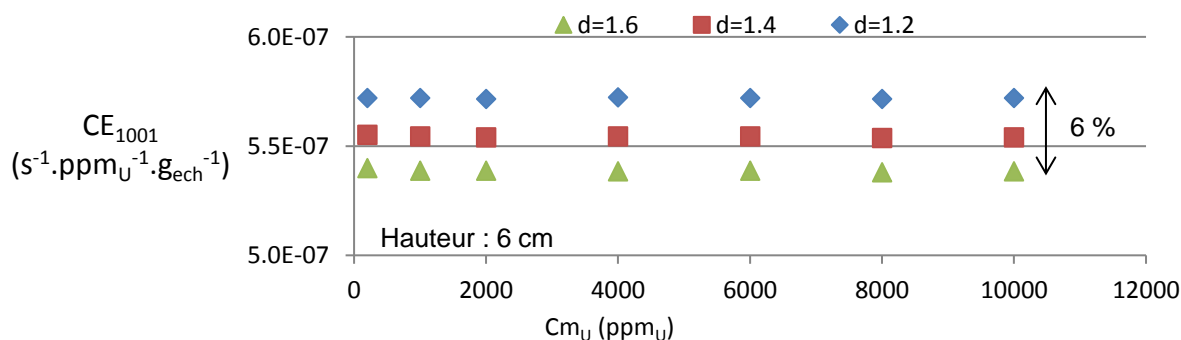


Figure 39 : Coefficient d'étalonnage  $CE_{1001}$  en fonction de la teneur en uranium et de la densité de l'échantillon pour une hauteur de remplissage de 6 cm.

Le tracé du coefficient d'étalonnage en fonction de la hauteur de remplissage (Figure 40) montre l'effet d'absorption dans la matrice. En effet, on note qu'entre une hauteur de remplissage de 1 cm et 6 cm, ce coefficient est divisé par un facteur 2.07.

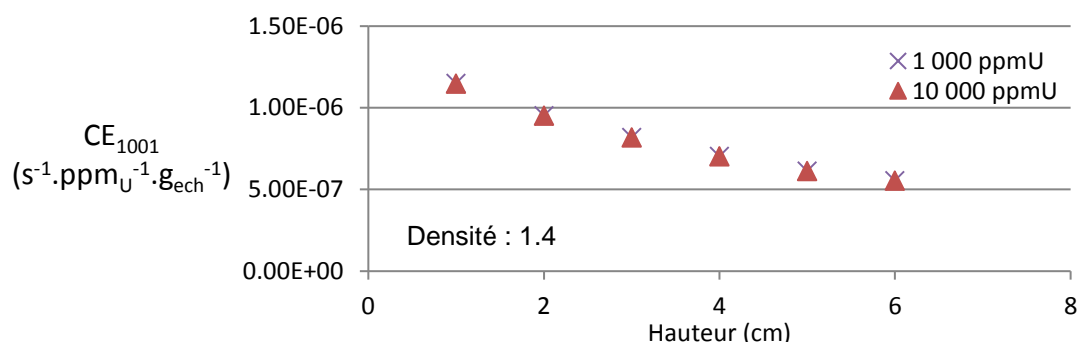


Figure 40 : Coefficient d'étalonnage  $CE_{1001}$  en fonction de la hauteur de remplissage pour deux teneurs en uranium.

## II.3 Utilisation de la raie à 92 keV

La raie à 92 keV est classiquement utilisée par ORANO pour des mesures en laboratoire. Cette partie a pour objectif de décrire les principaux paramètres d'influences sur cette raie (densité, minéralogie, hauteur de remplissage).

### II.3.1 Contribution principales

La raie à 92 keV est dominée principalement par les émissions de deux radionucléides :

- ❶ l'émission d'un rayon X à 93.35 keV (qui contribue au signal à 92 keV en raison de la résolution du détecteur) lié à  $^{235}\text{U}$ . Cette émission provient de la réorganisation du cortège électronique de l'atome de thorium suite à la désintégration  $\alpha$  de  $^{235}\text{U}$  vers le  $^{231}\text{Th}$ . Son intensité d'émission est tabulée et vaut  $I_{93\text{keV}}(^{235}\text{U}) = 5.75\%$ ,
- ❷ l'émission d'un doublet gamma du  $^{234}\text{Th}$  à 92.38 keV et 92.80 keV (situé en haut de la chaîne de  $^{238}\text{U}$ ). L'intensité d'émission totale  $I_{92\text{keV}}(^{234}\text{Th})$  vaut 4.33 %.

Comme  $^{235}\text{U}$  et le  $^{234}\text{Th}$  sont situés en haut des chaînes de filiation de l'uranium, l'aire nette de la raie à 92 keV n'est pas soumise aux déséquilibres potentiels de cette chaîne. La Figure 41 montre l'importance relative de ces émissions.

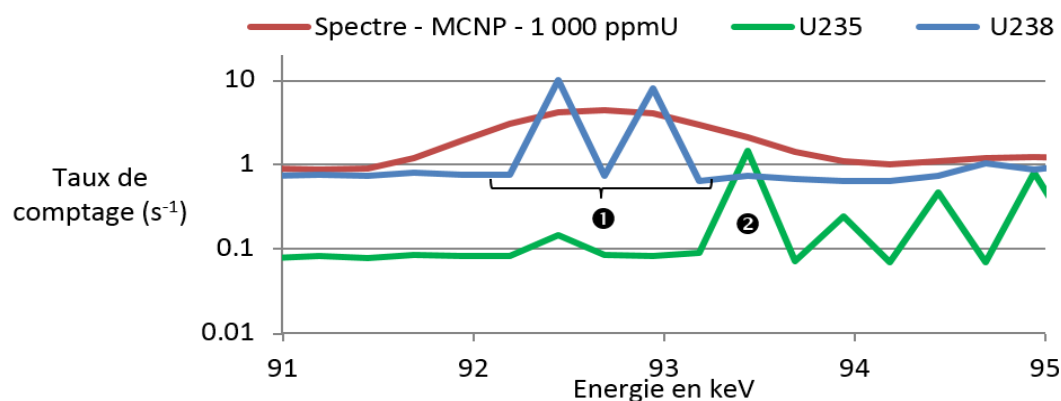


Figure 41 : Spectres MCNP d'émission des deux chaînes de filiation de l'uranium pour l'échantillon décrit au § II.2.1. En vert, le spectre induit par la chaîne de filiation de  $^{235}\text{U}$  et en bleu le spectre induit par la chaîne de filiation de  $^{238}\text{U}$ . En rouge, le spectre total d'émission des deux chaînes convolué par la résolution du détecteur.

**Remarque :** De fortes variations d'intensité d'émission existent pour les deux rayonnements gamma émis par le  $^{234}\text{Th}$  à 63 et 92 keV suivant la bibliothèque de données nucléaires exploitée (ce dernier étant scindé en 2 raies à 92.4 et 92.8 keV). Il a été décidé dans la suite de ce chapitre de choisir une intensité d'émission de 4.33 % à 92 keV (somme des deux intensités d'émission) pour le  $^{234}\text{Th}$  donnée par la bibliothèque LARA car elle permet de refléter au mieux les différentes teneurs en uranium lors de l'étude expérimentale (voir § II.6). Cette affirmation est d'autant plus vraie avec les mesures de spectrométrie gamma basse résolution décrites dans le chapitre III.

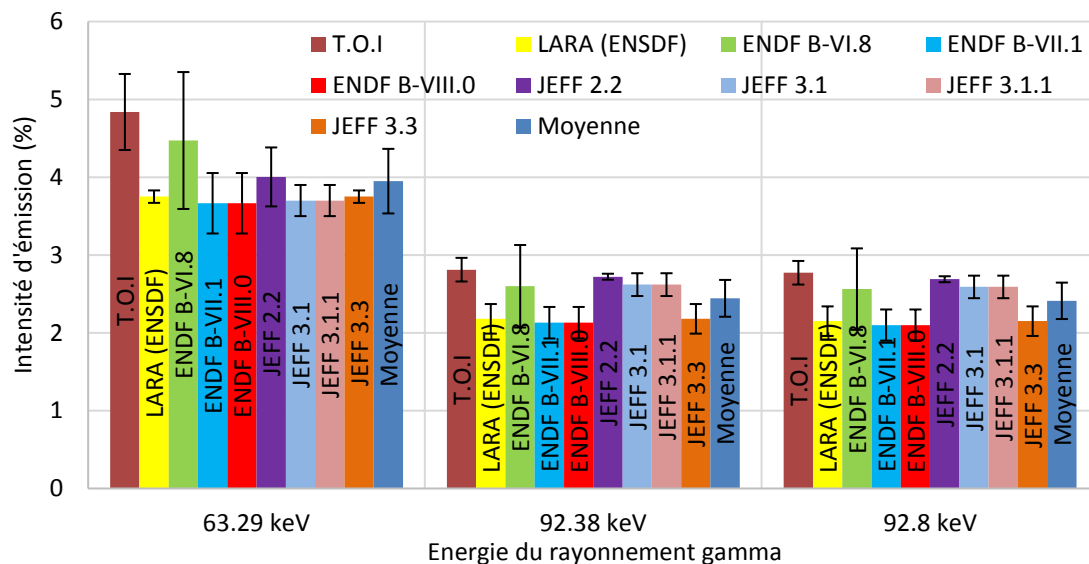


Figure 42 : Intensité d'émission gamma du  $^{234}\text{Th}$  suivant la bibliothèque de données exploitée

### II.3.2 Calcul de la teneur en uranium : $\text{Cm}_u(92 \text{ keV})$

On peut déduire la teneur en uranium de l'aire nette de la raie à 92 keV. On exprime ci-dessous le nombre de photons détectés pour chaque émission en fonction de la teneur en uranium :

- En utilisant la formule (Eq. 2.1) du § II.2.1, cette fois-ci appliquée au  $^{234}\text{Th}$  à 92 keV, et en posant  $S_{92}({}^{234}\text{Th})$  l'aire nette due à l'émission du doublet gamma du  $^{234}\text{Th}$  à 92 keV, on obtient, en négligeant le bruit de fond (sans échantillon) dans la raie à cette énergie :

$$S_{92}({}^{234}\text{Th}) = \frac{\text{Eff}_{92\text{keV}} \times I_{92\text{keV}}({}^{234}\text{Th}) \times Tc \times M_{ech} \times Na \times \ln(2) \times \text{Cm}_u}{1.0072 \times 10^6 \times M_{238U} \times T_{\frac{1}{2}}({}^{238}\text{U})}$$

- De même, en posant  $S_{92}({}^{235}\text{U})$  l'aire nette due à l'émission d'un rayon X de l'isotope  $^{235}\text{U}$  à 93 keV et  $\frac{A({}^{235}\text{U})}{A({}^{238}\text{U})}$  le rapport des activités de  $^{235}\text{U}$  et de  $^{238}\text{U}$  ( $\frac{A({}^{235}\text{U})}{A({}^{238}\text{U})} = 0.046$  dans le cas d'un enrichissement naturel en  $^{235}\text{U}$  de 0.72 %), on obtient :

$$S_{92}({}^{235}\text{U}) = \frac{\frac{A({}^{235}\text{U})}{A({}^{238}\text{U})} \times \text{Eff}_{93\text{keV}} \times I_{93\text{keV}}({}^{235}\text{U}) \times Tc \times M_{ech} \times Na \times \ln(2) \times \text{Cm}_u}{1.0072 \times 10^6 \times M({}^{238}\text{U}) \times T_{\frac{1}{2}}({}^{238}\text{U})}$$

- La somme des deux contributions nous donne l'aire nette totale de la raie à 92 keV,  $\text{Sn}(92 \text{ keV})$  :

$$\text{Sn}(92 \text{ keV}) = S_{92}({}^{234}\text{Th}) + S_{92}({}^{235}\text{U})$$

On définit, comme au § II.2.2, les coefficients d'étalonnage suivants :

$$- CE_{234Th} = \frac{Eff_{92keV} \times I_{92keV}({}^{234}Th) \times \ln(2) \times Na}{1.0072 \times 10^6 \times M({}^{238}U) \times T_{1/2}({}^{238}U)} = 5.967 \times 10^{-4} \times Eff_{92keV} \text{ (en s}^{-1} \cdot \text{gU}^{-1} \text{ ou s}^{-1} \cdot \text{ppmU}^{-1} \cdot \text{g}^{-1}\text{)}$$

$$- CE_{235U} = \frac{\frac{A({}^{235}U)}{A({}^{238}U)} \times Eff_{93keV} \times I_{93keV}({}^{235}U) \times \ln(2) \times Na}{1.0072 \times 10^6 \times M({}^{238}U) \times T_{1/2}({}^{238}U)} = 3.160 \times 10^{-5} \times Eff_{93keV} \text{ (en s}^{-1} \cdot \text{gU}^{-1} \text{ ou s}^{-1} \cdot \text{ppmU}^{-1} \cdot \text{g}^{-1}\text{)}$$

En notant  $Cm_U(92 \text{ keV})$  la fraction massique (en ppm<sub>U</sub> = mg<sub>U</sub>/kg<sub>échant</sub>) obtenue avec la raie à 92 keV, on obtient :

$$Cm_U(92 \text{ keV}) = \frac{S_n(92 \text{ keV})}{Tc \times M_{ech} \times (CE_{234Th} + CE_{235U})} \quad (Eq. 2.2)$$

### II.3.3 Etude des paramètres d'influence

#### II.3.3.1 Efficacité de détection à 92 keV

Lorsque l'on simule l'émission de rayonnements gamma d'énergie 92 keV à l'intérieur de l'échantillon et que l'on utilise le « tally F8 » de MCNP (histogramme des dépôts d'énergie) dans le cristal de germanium, la valeur du canal à 92 keV est directement égale à l'efficacité du détecteur à cette même énergie, c'est-à-dire au nombre de coups dans la raie par photon de 92 keV émis dans l'échantillon. Ces simulations (Tab.1) ont permis de montrer que l'efficacité de détection diminue en moyenne de 6 % entre un échantillon sans uranium et un échantillon de 10 000 ppm<sub>U</sub> en raison de l'auto-absorption (ce que montrera plus loin la Figure 47). Cette efficacité dépend par ailleurs de la hauteur de remplissage de l'échantillon et de la densité du milieu rencontré (voir Tableau 6).

**Tableau 6 : Efficacité de détection à 92 keV en fonction de la hauteur de remplissage, de la densité et de la teneur en uranium.**

|                    |      | 0 ppm <sub>U</sub> |        |        | 100 ppm <sub>U</sub> |        |        | 1 000 ppm <sub>U</sub> |        |        | 10 000 ppm <sub>U</sub> |        |        |
|--------------------|------|--------------------|--------|--------|----------------------|--------|--------|------------------------|--------|--------|-------------------------|--------|--------|
| Densité<br>Hauteur |      | 1.2                | 1.4    | 1.6    | 1.2                  | 1.4    | 1.6    | 1.2                    | 1.4    | 1.6    | 1.2                     | 1.4    | 1.6    |
|                    | 1 cm |                    | 0.0707 | 0.0691 | 0.0675               | 0.0707 | 0.0691 | 0.0675                 | 0.0706 | 0.069  | 0.0674                  | 0.0686 | 0.0678 |
| 2 cm               |      | 0.0571             | 0.0549 | 0.0528 | 0.0571               | 0.0548 | 0.0527 | 0.0569                 | 0.0547 | 0.0526 | 0.0555                  | 0.0531 | 0.0509 |
| 3 cm               |      | 0.0473             | 0.0449 | 0.0427 | 0.0472               | 0.0449 | 0.0426 | 0.0471                 | 0.0447 | 0.0425 | 0.0456                  | 0.043  | 0.0407 |
| 4 cm               |      | 0.0399             | 0.0376 | 0.0354 | 0.0399               | 0.0375 | 0.0354 | 0.0398                 | 0.0374 | 0.0352 | 0.0382                  | 0.0358 | 0.0335 |
| 5 cm               |      | 0.0343             | 0.0321 | 0.03   | 0.0343               | 0.032  | 0.03   | 0.0342                 | 0.0319 | 0.0298 | 0.0327                  | 0.0303 | 0.0283 |
| 6 cm               |      | 0.0299             | 0.0276 | 0.0259 | 0.0299               | 0.0276 | 0.0259 | 0.0298                 | 0.0275 | 0.0257 | 0.0284                  | 0.0261 | 0.0243 |

#### II.3.3.2 Hauteur de remplissage

Différentes hauteurs de remplissage de l'échantillon ont été simulées, de 1 à 6 cm. Un phénomène de saturation du signal de la raie à 92 keV lié à son atténuation lors de la traversée de l'échantillon est observable à partir de 2 à 3 cm. Entre 1 000 ppm<sub>U</sub> et 10 000 ppm<sub>U</sub>, l'auto-absorption causée par la présence d'uranium reste faible comme signalé précédemment (environ 6 %). On remarque l'effet d'auto-atténuation sur l'aire nette à 92 keV en observant que celle-ci n'est pas multiplié par 10 entre 1 000 et 10 000 ppm<sub>U</sub> comme pour la raie à 1001 keV (voir § II.2.2), mais seulement d'un facteur 9.5.

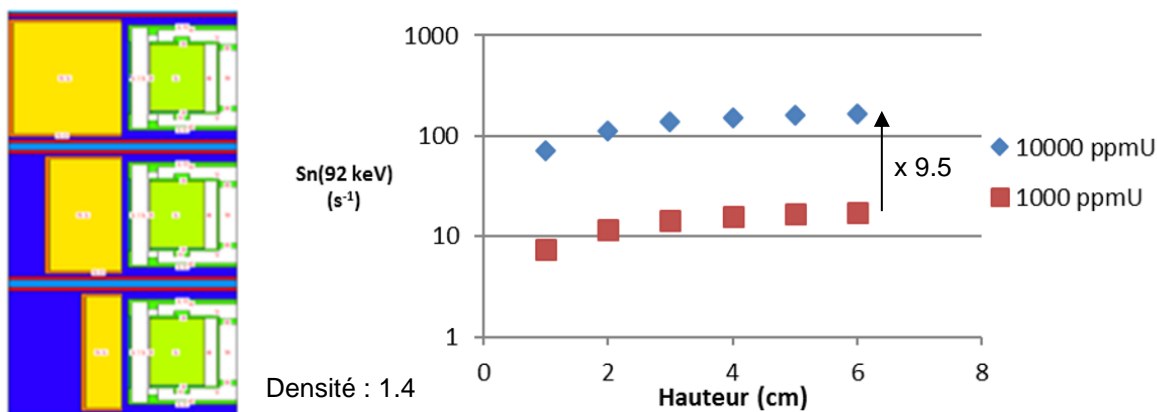


Figure 43 : Effet de la hauteur de remplissage sur le signal de la raie à 92 keV.

Notons que le nombre d’impulsions dans la raie à 92 keV est multiplié d’un facteur 30 par rapport au nombre d’impulsions dans la raie à 1001 keV (voir Figure 38 au § II.2.1) pour les deux teneurs simulées. Il est donc théoriquement envisageable de diminuer les temps de mesure d’un facteur 30 comme nous le verrons par la suite lors de l’étude expérimentale (voir § II.6).

### II.3.3.3 Densité

Trois densités d’échantillon ont été implémentées dans les simulations : 1.2, 1.4, et 1.6. Les autres paramètres restent constants : hauteur de remplissage (6 cm) et minéralogie (SiO<sub>2</sub>). Les résultats sur l’aire nette de la raie à 92 keV, représenté sur la Figure 44, montrent un effet sur le signal de l’ordre de +/- 6.5 % autour de la densité 1.4 mais la masse d’uranium évoluant avec la densité, à teneur constante, la Figure 47 du § II.3.3.5 suivant permet une analyse plus pertinente à masse d’uranium fixe.

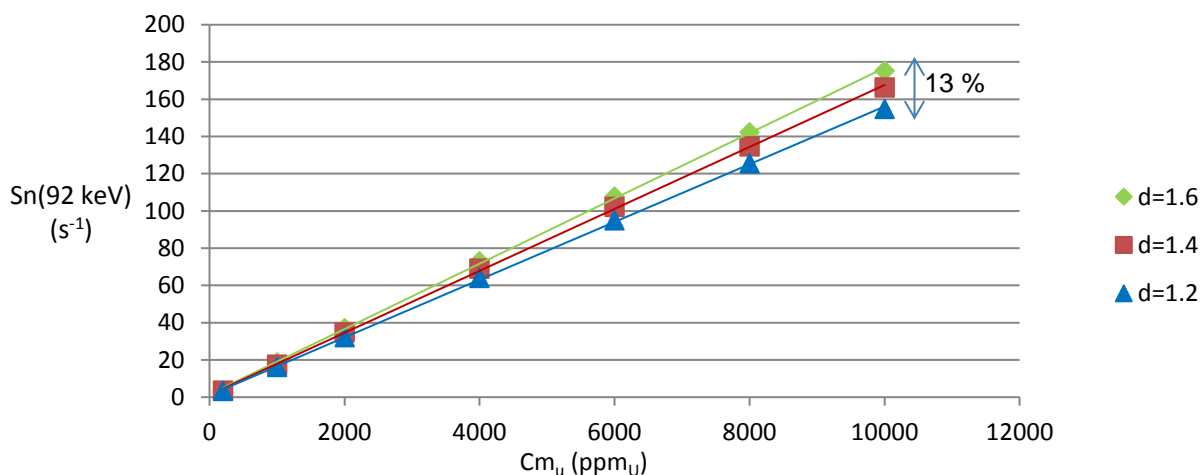


Figure 44 : Effet de la densité sur le signal de la raie à 92 keV.

### II.3.3.4 Minéralogie

Trois minéralogies d’échantillon ont été testées par simulation en fixant la hauteur de remplissage à 6 cm et la densité à 1.4. Les minéralogies choisies (Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, sable SiO<sub>2</sub> et soufre) ont été sélectionnées car elles représentent des valeurs minimale, moyenne et maximale du coefficient d’atténuation massique pour différents matériaux spécifiés par ORANO (Figure 45).

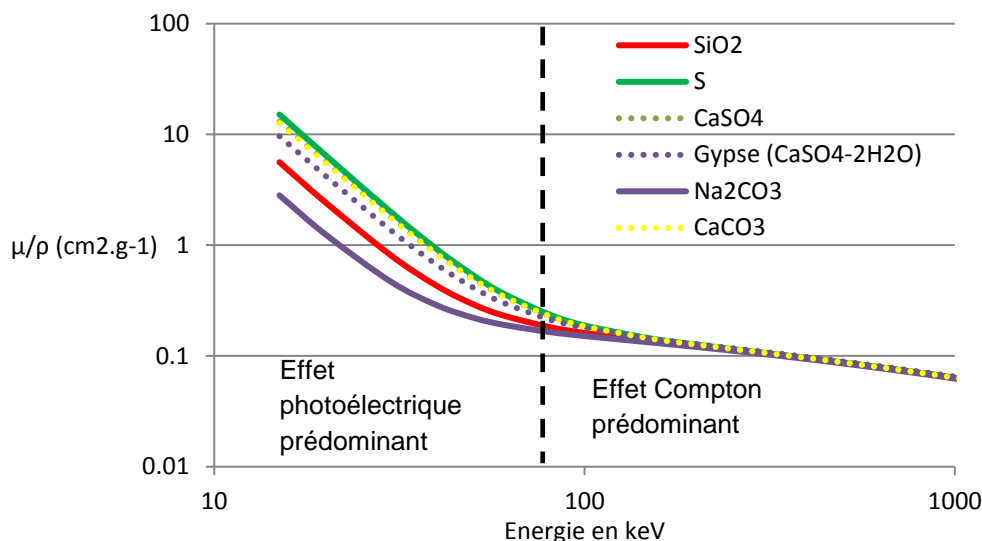


Figure 45 : Coefficient d'atténuation massique pour différentes minéralogies.

Deux teneurs en uranium ont été testées : 1 000 et 10 000 ppm<sub>U</sub>.

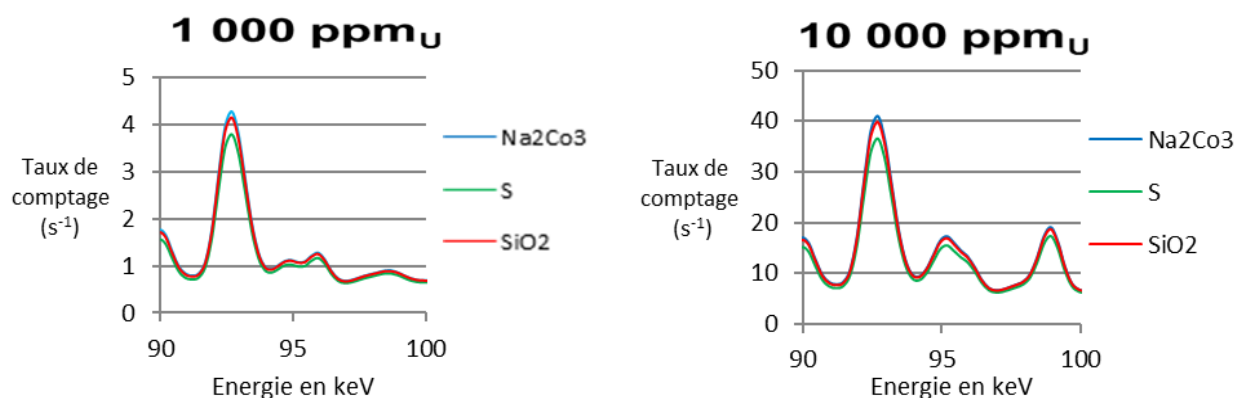


Figure 46 : Effet de la minéralogie entre 90 et 100 keV

On remarque que la surface nette de la raie à 92 keV dépend peu de la minéralogie. Pour 1 000 ppm<sub>U</sub>, la différence entre les aires nettes pour la minéralogie Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> et le soufre est de 12 %. Elle est de 10 % pour 10 000 ppm<sub>U</sub>.

Les études menées sur les effets induits par la densité, la minéralogie, la hauteur de remplissage et la teneur en uranium de l'échantillon ont permis de mettre en lumière la grande instabilité de la raie à 92 keV. Néanmoins, on peut noter que la hauteur de remplissage et la densité peuvent être connues. Il reste donc, comme seule incertitude, la minéralogie de l'échantillon. Cependant, un échantillon ne peut être seulement composé de soufre ou de carbonate de sodium, ce qui rend les valeurs présentées sur la minéralogie très supérieures aux valeurs réelles observées pour des échantillons de minerai d'uranium.

### II.3.3.5 Coefficient d'étalonnage CE<sub>92</sub>

Comme pour l'analyse de la raie à 1001 keV, on peut définir un coefficient d'étalonnage CE<sub>92</sub> représentant le nombre de coups détectés par seconde à 92 keV normalisé par la teneur en uranium. D'un point de vue pratique, il suffit d'utiliser ce coefficient sur l'aire nette de la raie à 92 keV mesurée pour remonter à la teneur en uranium de l'échantillon.



$$CE_{92} = \frac{Sn(92 \text{ keV})}{Tc \times Cm_U(92 \text{ keV}) \times M_{ech}}$$

D'après l'équation (Eq. 2.2) du § II.3.2, on note que :

$$CE_{92} = CE_{234Th} + CE_{235u}$$

L'influence des trois densités sur le coefficient d'étalonnage est représentée sur la Figure 47.

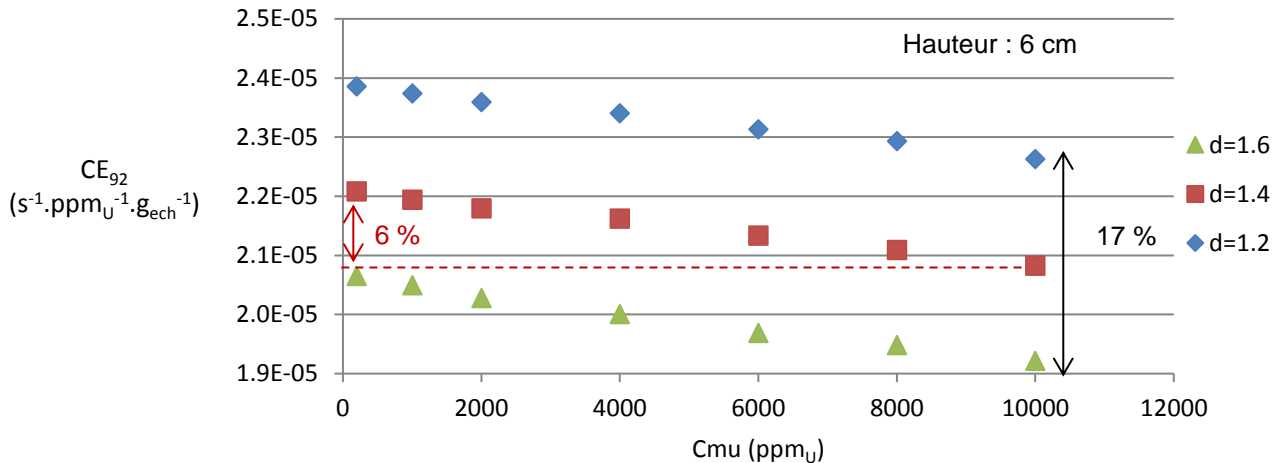


Figure 47 : Coefficient d'étalonnage  $CE_{92}$  en fonction de la densité et de la teneur en uranium de l'échantillon.

On note que plus la densité augmente, plus le coefficient d'étalonnage diminue car les rayonnements émis à 92 keV sont d'avantage absorbés par le milieu. Cependant, une légère décroissance du coefficient d'étalonnage avec la teneur en uranium est à noter, contrairement à la raie à 1001 keV (Figure 39). Cette différence est de l'ordre de 6 % entre 200 ppmU et 10 000 ppmU pour une densité de 1.4. Ceci est dû à l'auto-absorption des rayonnements de 92 keV par l'uranium présent dans l'échantillon.

Le tracé du coefficient d'étalonnage en fonction de la hauteur de remplissage (voir Figure 48) montre l'effet d'absorption et angle solide dans la matrice. En effet, on note qu'entre une hauteur de remplissage de 1 cm et 6 cm, ce coefficient est divisé par un facteur 2.52, pour les deux teneurs en uranium étudiées.

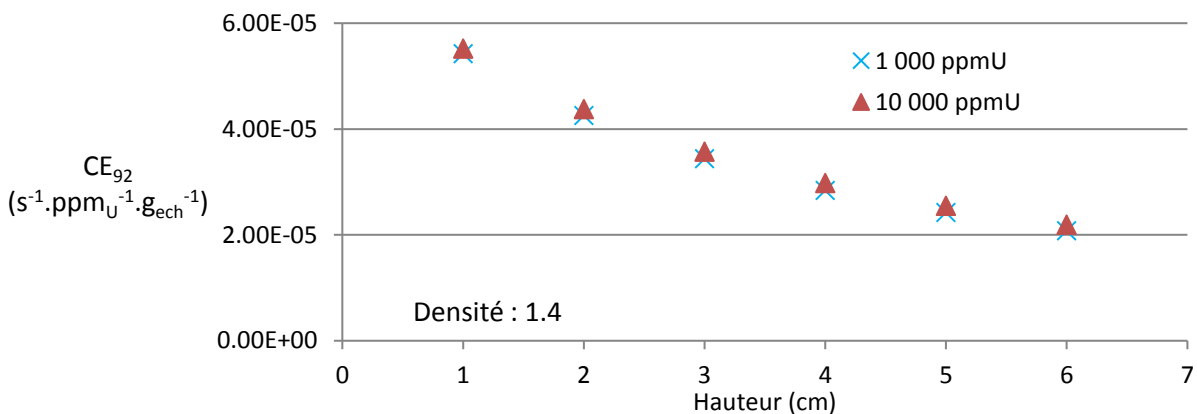


Figure 48 : Coefficient d'étalonnage  $CE_{92}$  en fonction de la hauteur de remplissage pour deux teneurs en uranium.

## II.4 Utilisation de la raie à 98 keV

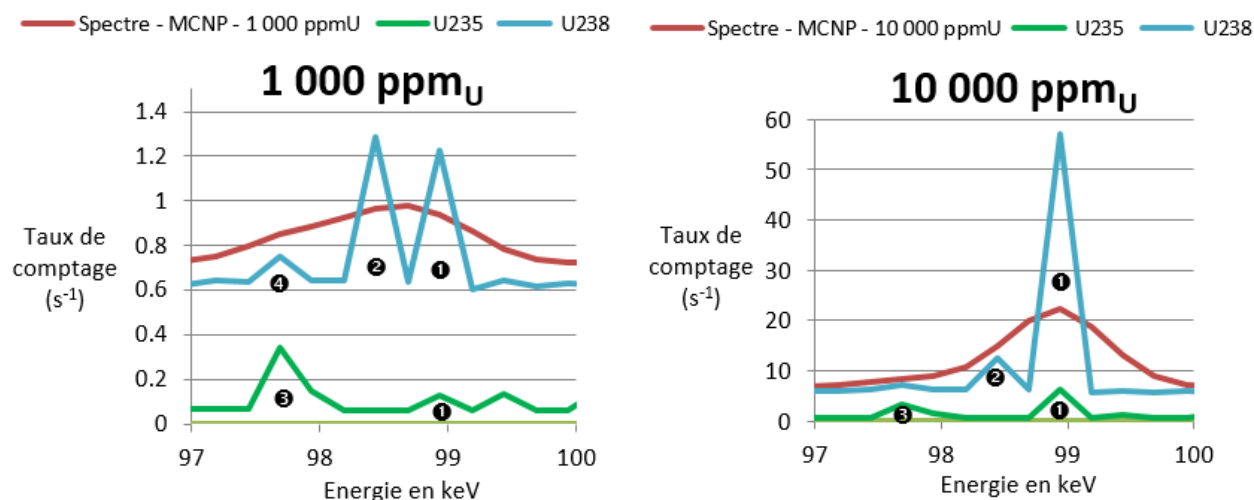
Une démarche similaire à la précédente raie a été conduite pour la raie à 98 keV.

## II.4.1 Contributions principales

La raie étudiée à 98 keV est dominée par quatre émissions :

- ❶ la fluorescence  $XK_{\alpha 1}$  de l'uranium à 98.439 keV, cependant simulée par MCNP à 99 keV (voir Figure 50 et § II.4.2.1).
- ❷ une émission spontanée X à 98.439 keV liée au  $^{234m}\text{Pa}$  (en haut de la chaîne de l' $^{238}\text{U}$ ) qui fait suite à la conversion interne de son noyau fils  $^{234}\text{U}$ . L'intensité d'émission correspondante vaut  $I_{98\text{keV}}(^{234m}_{91}\text{Pa}) = 0.316 \%$ ,
- ❸ l'émission spontanée de deux rayons X liés au  $^{223}\text{Ra}$  à 97.530 keV et 97.853 keV (chaîne de l' $^{235}\text{U}$ ). Cette émission provient de la réorganisation du cortège électronique de l'atome de radon suite à la désintégration  $\alpha$  du  $^{223}\text{Ra}$  vers le  $^{219}\text{Rn}$ . L'intensité d'émission totale est tabulée à  $I_{92\text{keV}}(^{223}_{88}\text{Ra}) = 2.72 \%$ ,
- ❹ l'émission spontanée de deux rayons X liés au  $^{226}\text{Ra}$  à 97.530 keV et 97.853 keV (chaîne de l' $^{238}\text{U}$ ). Cette émission provient de la réorganisation du cortège électronique de l'atome de radon suite à la désintégration  $\alpha$  du  $^{226}\text{Ra}$  vers le  $^{222}\text{Rn}$ . L'intensité d'émission totale est tabulée à  $I_{92\text{keV}}(^{226}_{88}\text{Ra}) = 0.0351 \%$ .

La Figure 49 montre l'importance relative de ces émissions pour un échantillon de 1 000 ppm<sub>U</sub> et 10 000 ppm<sub>U</sub>. On constate notamment, pour le second, la prépondérance de l'auto-fluorescence par rapport aux autres contributions. Ce phénomène ne suit en effet pas une simple évolution linéaire comme les émissions spontanées, mais il augmente de façon quadratique avec la teneur en uranium car, d'une part, la source de fluorescence devient plus intense, et d'autre part, la quantité d'uranium augmente.



**Figure 49 : Spectres MCNP représentant la contribution des 4 émissions présentes dans la raie à 98 keV pour un échantillon de référence en équilibre séculaire. En bleu, le spectre induit par la chaîne de filiation de l' $^{238}\text{U}$  et en vert le spectre induit par la chaîne de filiation de l' $^{235}\text{U}$ . Pour ces deux spectres, la résolution du détecteur n'est pas prise en compte afin d'apprécier la contribution de chaque émission. En rouge, le spectre total prend lui en compte la résolution du détecteur.**

## II.4.2 Méthode d'auto-fluorescence X

A l'issue de la description précédente, la méthode basée sur l'auto-fluorescence X est étudiée.

### II.4.2.1 La fluorescence X

Le principe physique de la fluorescence X est expliqué dans le § I.4.1. Pour rappel, il existe plusieurs phénomènes conduisant à l'éjection d'un électron d'une sous couche atomique comme la capture électronique (désintégration  $\varepsilon^+$ ) et la conversion interne (désexcitation électromagnétique du noyau) donnant lieu à l'émission d'un rayon X. Par ailleurs, des noyaux radioactifs peuvent émettre des rayonnements gamma eux aussi susceptibles de créer des lacunes électroniques. Prenons l'exemple de la chaîne de filiation de l'uranium : le  $^{214}\text{Bi}$  et le  $^{214}\text{Pb}$  émettent des rayonnements gamma qui peuvent, après diffusion Compton, éjecter par effet photoélectrique un électron d'une couche de l' $^{238}\text{U}$ , entraînant aussi l'émission de rayons X suite au réarrangement du cortège électronique. Ce phénomène d'excitation extérieure au noyau est la « **fluorescence X** ». MCNP génère les raies d'auto-fluorescence X induites par les rayonnements gamma modélisés, comme ceux émis par les isotopes radioactifs de la chaîne de filiation de l'uranium. On note que les pics d'auto-fluorescence sont systématiquement décalés entre la simulation et les données figurant dans les bibliothèques. La Figure 50 montre le décalage énergétique en keV ( $\Delta E$ ) entre les raies de fluorescence  $XK_{\alpha 1}$  et  $XK_{\alpha 2}$  simulées par MCNP et celles de la bibliothèque « table des isotopes [47] » pour des matériaux de numéros atomiques compris entre 40 et 92. Pour l'uranium, l'énergie de la raie  $XK_{\alpha 1}$  vaut 98.439 keV mais est simulée par MCNP à 99 keV.

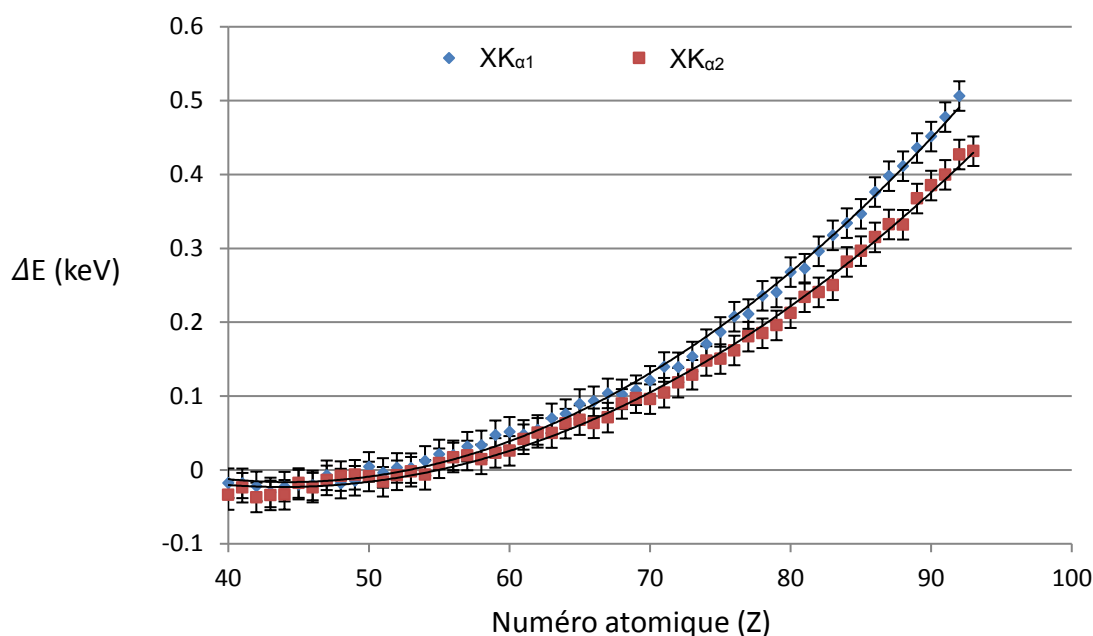


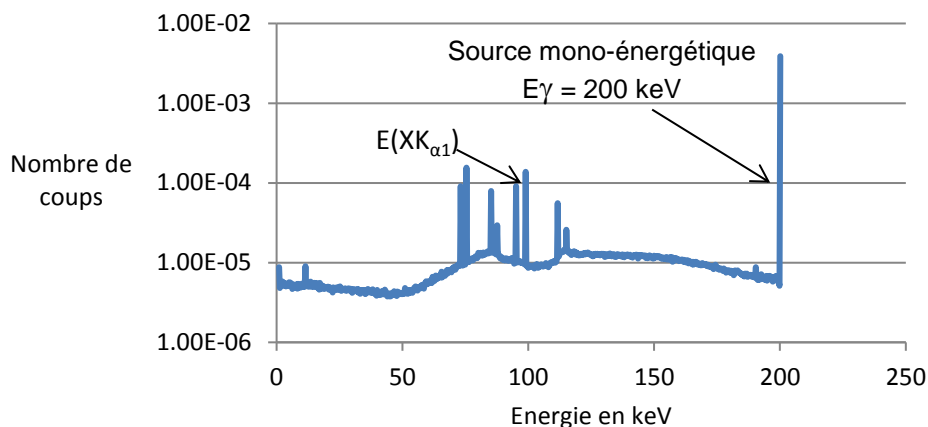
Figure 50 : Décalages énergétiques des raies de fluorescence X entre MCNP et la table des isotopes [47].

### II.4.2.2 Rendement de fluorescence

Chaque raie gamma émise par la chaîne de filiation de l'uranium peut provoquer, en général après diffusion Compton puis absorption photoélectrique, la fluorescence X des atomes d'uranium de l'échantillon. Afin de quantifier la capacité d'un photon d'énergie E à faire fluorescer l'uranium, un rendement de fluorescence spécifique à la géométrie de l'échantillon (teneur en uranium, hauteur de remplissage, densité, minéralogie) est défini comme le rapport entre la surface nette à 98 keV et la surface nette à l'énergie E dans le spectre du cristal germanium du détecteur, normalisé par la teneur en uranium et la masse de l'échantillon simulée :

$$\eta_{fluo}(E) = \frac{S_{nette}(XK_{\alpha 1})}{S_{nette}(E) \times C_{mU} \times M_{ech}} \text{ (en ppm}_{U^{-1}} \cdot g_{ech}^{-1} \equiv g_{U^{-1}})$$

Le rendement de fluorescence de l'échantillon « type » est obtenu en simulant l'émission dans l'échantillon de photons d'énergie E comme illustré en Figure 51 pour E = 200 keV.

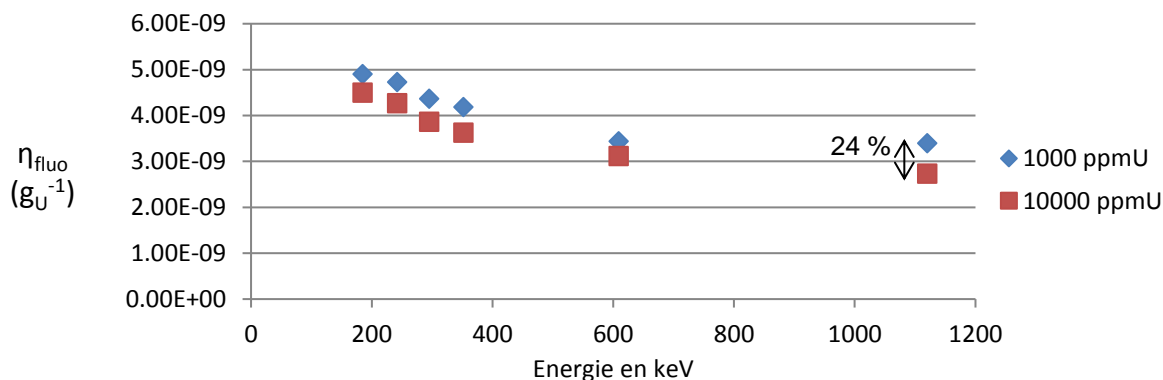


**Figure 51 : Spectre obtenu pour une source mono-énergétique de 200 keV avec un échantillon de 1 000 ppmU.**

Le rendement de fluorescence a été simulé pour deux teneurs en uranium (1 000 ppmU et 10 000 ppmU) et pour les 6 raies les plus intenses du spectre gamma :

- 185 keV ( $^{226}\text{Ra}$  et  $^{235}\text{U}$ )
- 242 keV, 295 keV et 352 keV ( $^{214}\text{Pb}$ )
- 609 keV et 1120 keV ( $^{214}\text{Bi}$ )

La Figure 52 représente le rendement de fluorescence pour ces 6 énergies dans un échantillon de 1 000 ppmU et 10 000 ppmU. La différence entre le rendement de fluorescence à 1 000 et 10 000 ppmU dépend de l'énergie  $E$  et est en moyenne de 13 %. Elle est due principalement à l'auto-absorption des rayons X de 98 keV dans l'uranium lui-même. Cependant, la différence s'élève à 24 % pour la raie à 1120 keV, principalement due à la statistique du résultat MCNP car celle-ci contribue peu à la fluorescence (entre 2 et 3 %) par rapport aux 5 autres raies (environ 75 % du signal de fluorescence – voir annexe A.3) car son intensité et son rendement de fluorescence sont faibles.



**Figure 52 : Rendements de fluorescence pour l'échantillon « type » calculé à différentes énergies et pour 2 teneurs en uranium.**

Dans la géométrie étudiée, le rendement de fluorescence diminue avec l'énergie, reflétant le caractère décroissant du coefficient d'atténuation massique (voir Figure 45) : plus l'énergie du photon est élevée, moins celui-ci a de probabilité d'interagir avec le milieu par effet Compton et de subir ensuite une absorption photoélectrique et in fine produire des rayons X de fluorescence.

Par ailleurs, on peut noter que le phénomène de fluorescence n'est pas soumis aux déséquilibres potentiels de la chaîne de filiation de l'uranium et permet donc de caractériser sa teneur. En effet, quel que soit le déséquilibre, il suffit de relever l'intensité des principales raies gamma (celles citées plus haut) dans le

spectre pour connaître le niveau de la source de fluorescence et en déduire la teneur en uranium à l'aide de la raie à 98 keV (voir § II.4.3).

### II.4.2.3 Effet de la densité

L'effet de la densité a été étudié pour 5 valeurs : 1.2, 1.3, 1.4, 1.5 et 1.6. La hauteur de remplissage est prise égale à 6 cm et la minéralogie reste du sable SiO<sub>2</sub>. On remarque sur la Figure 53 que le rendement de fluorescence dépend très peu de la densité (de l'ordre du pourcent). Cette indépendance à la densité de la mesure basée sur la fluorescence X de l'uranium a déjà été observée dans le brevet CA1106082A « Device for assaying uranium and/or thorium in ore specimens » [48]. Celui-ci décrit un dispositif de caractérisation de l'uranium et du thorium présent dans des échantillons de minerai par fluorescence X induite par une source  $\gamma$  extérieure au minerai.

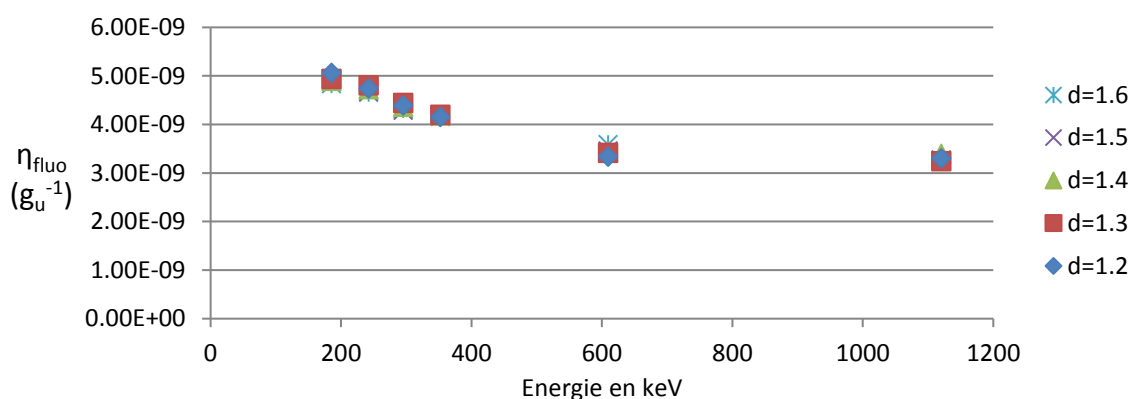


Figure 53 : Effet de la densité sur le rendement de fluorescence à 1 000 ppmu.

### II.4.2.4 Effet de la hauteur de remplissage

L'effet de la hauteur de remplissage a été étudié pour 6 hauteurs différentes variant de 1 à 6 cm. La densité est prise égale à 1.4 et la minéralogie reste du sable SiO<sub>2</sub>. La dépendance de  $\eta_{\text{fluo}}$  suivant la hauteur de remplissage est représentée sur la Figure 54. A masse d'uranium constante, plus la hauteur de remplissage de l'échantillon est grande, moins il y a de fluorescence car la probabilité que les rayonnements diffusés interagissent avec un atome d'uranium de l'échantillon diminue. Cet effet de dilution de l'uranium est d'autant plus marqué que l'énergie des rayonnements gamma est faible car ceux-ci peuvent directement induire la fluorescence de l'uranium sans diffusion Compton préalable. On note aussi un écart sur le rendement de fluorescence de plus d'un facteur 2 à 185 keV entre 1 et 6 cm. Pour les rayonnements de plus haute énergie, il faut un échantillon suffisamment grand pour que se produise un effet Compton préalablement à l'absorption photoélectrique, d'où l'équilibre observé (resserrement des rendements de fluorescence à 1120 keV) avec l'effet contraire de dilution de l'uranium.

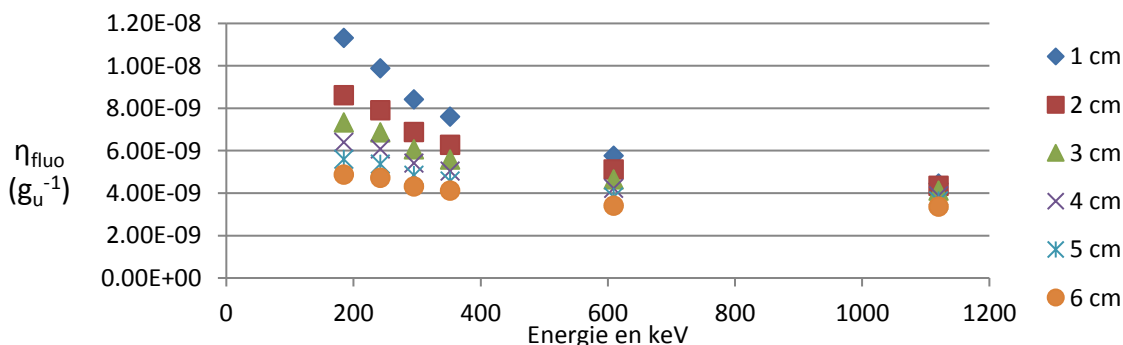


Figure 54 : Effet de la hauteur de remplissage sur le rendement de fluorescence à 1 000 ppmu.

### II.4.3 Calcul de la teneur en uranium : Cm<sub>U</sub>(98 keV)

Pour permettre une quantification de la teneur en uranium de l'échantillon avec l'aire nette de la raie à 98 keV, on exprime le nombre de coups détectés à 98 keV pour chaque contribution à l'émission en fonction de cette teneur :

- la contribution de la fluorescence dans l'aire nette de la raie à 98 keV, notée  $S_{98}(UK_{\alpha 1})$ , est égale à la somme des aires nettes de toutes les raies présentes dans le spectre pondérées par leur rendement de fluorescence respectif calculé pour 1 ppm<sub>U</sub>, multipliée par la teneur Cm<sub>U</sub> et la masse de l'échantillon :

$$S_{98}(UK_{\alpha 1}) = Cm_U \times M_{ech} \times \sum_{E_\gamma} [\eta_{fluo}(E_\gamma, d, h) \times S_{nette}(E_\gamma)]$$

Avec :

-  $\eta_{fluo}(E_\gamma, d, h)$  : rendement de fluorescence à l'énergie  $E_\gamma$  pour une hauteur  $h$  et une densité  $d$  d'échantillon.

-  $S_{nette}(E_\gamma)$  : aire nette de la raie à l'énergie  $E_\gamma$ .

- la contribution de l'émission d'un rayon X dans l'aire nette de la raie à 98 keV, provenant du  $^{234m}\text{Pa}$  et notée  $S_{98} (^{234m}_{91}\text{Pa})$ , est calculée de la même manière que la contribution de l'émission X du  $^{235}\text{U}$  dans l'aire nette du 92 keV :

$$S_{98} (^{234m}_{91}\text{Pa}) = Cm_U \times Tc \times M_{ech} \times CE_{^{234m}\text{Pa}}$$

Avec :

-  $Tc$  : Temps de comptage (s)

-  $M_{ech}$  : Masse de l'échantillon (g)

$$CE_{^{234m}\text{Pa}} = \frac{Eff_{98\text{keV}} \times I_{98\text{keV}}(^{234m}_{91}\text{Pa}) \times \ln(2) \times Na}{1.0072 \times 10^6 \times M(^{238}_{92}\text{U}) \times T_{1/2}(^{238}_{92}\text{U})} = 2.841 \times 10^{-5} \times Eff_{98\text{keV}} \text{ en } \text{s}^{-1} \cdot \text{gU}^{-1}$$

-  $Eff_{98\text{keV}}$  : Efficacité de détection à 98 keV

- la contribution de l'émission de rayons X provenant du  $^{223}\text{Ra}$ , notée  $S_{98} (^{223}_{88}\text{Ra})$ , dans la raie à 98 keV :

$$S_{98} (^{223}_{88}\text{Ra}) = Cm_U \times Tc \times M_{ech} \times CE_{^{223}\text{Ra}}$$

Avec :

-  $Tc$  : Temps de comptage (s)

-  $M_{ech}$  : Masse de l'échantillon (g)

$$CE_{^{223}\text{Ra}} = \frac{\frac{A(^{223}_{88}\text{Ra})}{A(^{238}_{92}\text{U})} \times Eff_{98\text{keV}} \times \ln(2) \times Na \times I_{98\text{keV}}(^{223}_{88}\text{Ra})}{1.0072 \times 10^6 \times M(^{238}_{92}\text{U}) \times T_{1/2}(^{238}_{92}\text{U})} = 1.620 \times 10^{-5} \times Eff_{98\text{keV}} \text{ en } \text{s}^{-1} \cdot \text{gU}^{-1}$$

-  $Eff_{98\text{keV}}$  : Efficacité de détection à 98 keV

-  $\frac{A(^{223}_{88}\text{Ra})}{A(^{238}_{92}\text{U})}$  : Rapport des activités des isotopes  $^{223}\text{Ra}$  (chaîne de  $^{235}\text{U}$ ) et  $^{238}\text{U}$ , qui vaut

$\frac{A(^{223}_{88}\text{Ra})}{A(^{238}_{92}\text{U})} = \frac{A(^{235}_{92}\text{U})}{A(^{238}_{92}\text{U})} = 0.046$  dans le cas d'un enrichissement naturel en  $^{235}\text{U}$  (0.72 %) et d'un équilibre séculaire de la chaîne de  $^{235}\text{U}$  dans laquelle se trouve le  $^{223}\text{Ra}$

4. la contribution de l'émission de rayons X provenant du  $^{226}\text{Ra}$ , notée  $S98$  ( $^{226}\text{Ra}$ ), dans la raie à 98 keV :

$$S98 (^{226}\text{Ra}) = Cm_U \times Tc \times M_{ech} \times CE_{226\text{Ra}}$$

Avec :

-  $Tc$  : Temps de comptage (s)

-  $M_{ech}$  : Masse de l'échantillon (g)

$$- CE_{226\text{Ra}} = \frac{\frac{A(^{226}\text{Ra})}{A(^{238}\text{U})} \times Eff_{98\text{keV}} \times I_{98\text{keV}}(^{226}\text{Ra}) \times \ln(2) \times Na}{1.0072 \times 10^6 \times M(^{238}\text{U}) \times T_{1/2}(^{238}\text{U})} = 4.447 \times 10^{-6} \times Eff_{98\text{keV}} \text{ s}^{-1} \cdot \text{gU}^{-1}$$

-  $Eff_{98\text{keV}}$  : Efficacité de détection à 98 keV

-  $\frac{A(^{226}\text{Ra})}{A(^{238}\text{U})}$  : Rapport des activités égal à 1 à l'équilibre séculaire de la chaîne de  $^{238}\text{U}$  dans laquelle se trouve le  $^{226}\text{Ra}$

5. la somme de toutes les contributions correspond à l'aire nette totale de la raie à 98 keV, notée  $Sn(98 \text{ keV})$ ,

$$Sn(98 \text{ keV}) = S98(UK_{\alpha 1}) + S98(^{234\text{m}}\text{Pa}) + S98(^{223}\text{Ra}) + S98(^{226}\text{Ra})$$

grâce à laquelle on peut calculer la fraction massique  $Cm_U(98 \text{ keV})$  en  $\text{mg/kg}_{\text{échantillon}}$  (ppm d'uranium) obtenue avec la raie à 98 keV. Ainsi :

$$Cm_U(98 \text{ keV}) = \frac{Sn(98 \text{ keV})}{M_{ech} \times \sum_{E_{\gamma}} [\eta_{\text{fluo}}(E_{\gamma}, d, h) \times S_{\text{nette}}(E_{\gamma})] + Tc \times M_{ech} \times (CE_{234\text{m}}\text{Pa} + CE_{223}\text{Ra} + CE_{226}\text{Ra})} \quad (\text{Eq. 2.3})$$

Notons que les contributions du  $^{223}\text{Ra}$  et du  $^{226}\text{Ra}$  influencent peu le résultat (Figure 49). Des valeurs à l'équilibre pour les ratios  $\frac{^{223}\text{Ra}}{^{238}\text{U}}$  et  $\frac{^{226}\text{Ra}}{^{238}\text{U}}$  sont donc utilisées en première approximation afin de déterminer la teneur en uranium.

## II.4.4 Etude des paramètres d'influence

### II.4.4.1 Hauteur de remplissage

Différentes hauteurs de remplissage de l'échantillon ont été simulées de 1 cm à 6 cm pour une densité de 1.4. La Figure 55 représente, pour deux teneurs en uranium (1 000 et 10 000 ppm<sub>U</sub>), la surface nette de la raie à 98 keV.

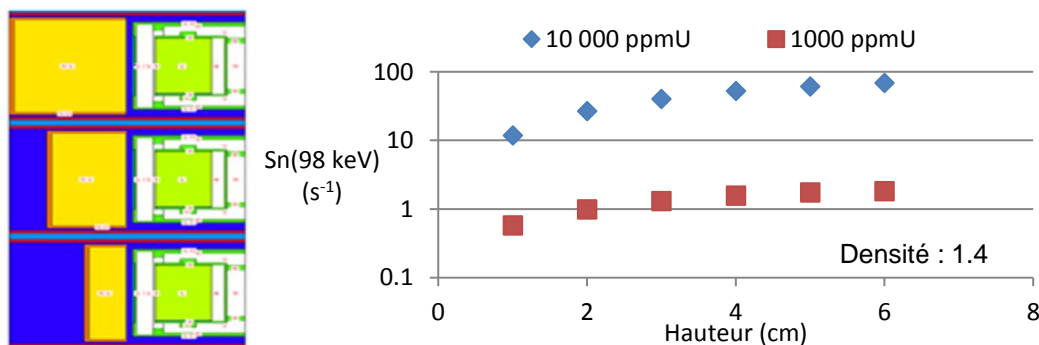


Figure 55 : Effet de la hauteur de remplissage sur le signal de la raie à 98 keV.

Notons que le nombre d'impulsions dans la raie à 98 keV est supérieur d'un facteur 4 par rapport à celui de la raie à 1001 keV à 1 000 ppm<sub>U</sub> (voir § II.2.1) alors qu'elle est multipliée d'un facteur 10 à 10 000 ppm<sub>U</sub>. En effet, dans le 1<sup>er</sup> cas (1000 ppm<sub>U</sub>), l'émission passive du <sup>234m</sup>Pa domine alors qu'à 10 000 ppm<sub>U</sub> la fluorescence domine (voir Figure 49). Il est donc théoriquement envisageable de diminuer les temps de mesure d'un facteur variant de 4 à 10 suivant la teneur mesurée comme nous le verrons par la suite lors des études expérimentales (voir § II.6).

#### II.4.4.2 Densité

Trois densités d'échantillon ont été implémentées dans les simulations : 1.2, 1.4, et 1.6. Les autres paramètres restent constants : hauteur de remplissage de 6 cm et minéralogie SiO<sub>2</sub>.

L'influence de la densité sur l'aire nette de la raie à 98 keV est représentée sur la Figure 56.

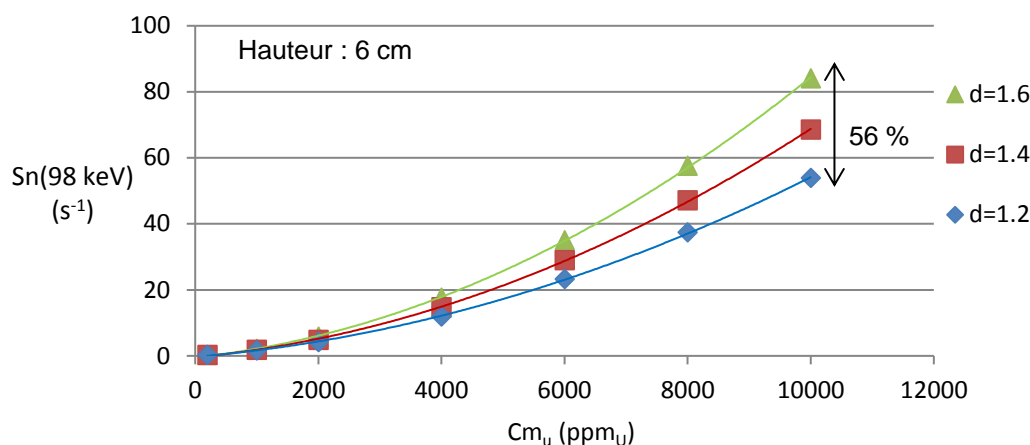


Figure 56 : Effet de la densité sur le signal de la raie à 98 keV.

Pour une même densité, l'aire nette de la raie à 98 keV sur la plage 0 à 10 000 ppm<sub>U</sub> augmente approximativement avec le carré de la teneur en uranium car le nombre d'atomes d'uranium dans l'échantillon mais aussi de nucléides émetteurs gamma (<sup>214</sup>Bi, <sup>214</sup>Pb...) pouvant faire fluorescer l'uranium augmentent. A 1 000 ppm<sub>U</sub>, la différence sur le signal à 98 keV entre une densité de 1.2 et 1.6 est de 30 %, elle est de 56 % à 10 000 ppm<sub>U</sub>. Il est donc nécessaire de connaître la densité de l'échantillon pour exploiter la mesure avec cette raie.

#### II.4.4.3 Minéralogie

Trois minéralogies ont été testées par simulation et les résultats ont été présentés en Figure 46 au § II.3.3.4. A 1 000 ppm<sub>U</sub>, l'effet de la minéralogie sur la surface nette de la raie à 98 keV est de l'ordre de 7 % entre du Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> et du soufre. A 10 000 ppm<sub>U</sub>, cette différence est de 15 %.

#### II.4.4.4 Coefficient d'étalonnage CE<sub>98</sub>

De la même manière que pour l'aire nette à 92 keV, on définit un coefficient d'étalonnage CE<sub>98</sub> représentant le nombre de coups par seconde à 98 keV normalisé par la masse d'uranium dans l'échantillon (en s<sup>-1</sup>.g<sub>U</sub><sup>-1</sup>).

$$CE_{98} = \frac{Sn(98 \text{ keV})}{Tc \times Cm_U \times M_{ech}}$$

Ainsi avec l'équation (Eq. 2.3), on peut exprimer CE<sub>98</sub> par :

$$CE_{98} = CE_{234m_{91}Pa} + CE_{223_{83}Ra} + CE_{226_{86}Ra} + \frac{\sum_{E_\gamma} [\eta_{fluo}(E_\gamma, d, h) \times S_{nette}(E_\gamma)]}{Tc}$$



L'influence de la densité sur le coefficient d'étalonnage  $CE_{98}$  est représentée sur la Figure 57.

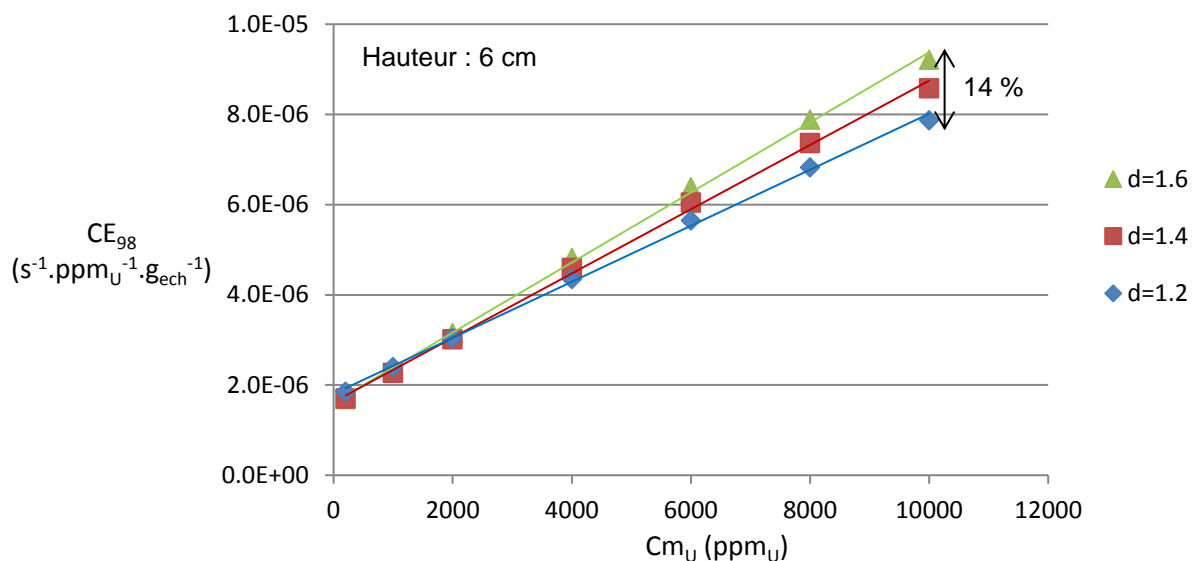


Figure 57 : Coefficient d'étalonnage  $CE_{98}$  en fonction de la densité et de la teneur en uranium de l'échantillon.

Il est à noter que plus la densité augmente, plus le coefficient d'étalonnage est grand. Ceci est expliqué par l'augmentation de la fluorescence, due à celle des activités massiques des nucléides en présence, qui pour une teneur en uranium donnée, induit un terme source de fluorescence plus important, et d'autre part à l'accroissement des diffusions Compton et absorptions photoélectriques avec la densité. De plus, le coefficient d'étalonnage est croissant avec la teneur en uranium, à nouveau en raison de l'augmentation du terme source qui induit de la fluorescence. Ce comportement est opposé au caractère décroissant de  $CE_{92}$  (Figure 47). En d'autres termes, le ratio des aires nettes à 98 keV et à 92 keV augmente avec cette teneur, la fluorescence devenant de plus en plus importante.

Le tracé du coefficient d'étalonnage  $CE_{98}$  en fonction de la hauteur de remplissage est représenté en Figure 58. On note que la forme de la courbe  $CE_{98}$  à 1 000 ppm<sub>U</sub> est la même que pour  $CE_{92}$  et  $CE_{1001}$ . En effet, dans ce cas, les émissions passives dominent l'aire nette de la raie à 98 keV (Figure 48). Cependant à 10 000 ppm<sub>U</sub>, quand la fluorescence domine l'aire nette de la raie à 98 keV, on observe un maximum de  $CE_{98}$  vers 3 cm.

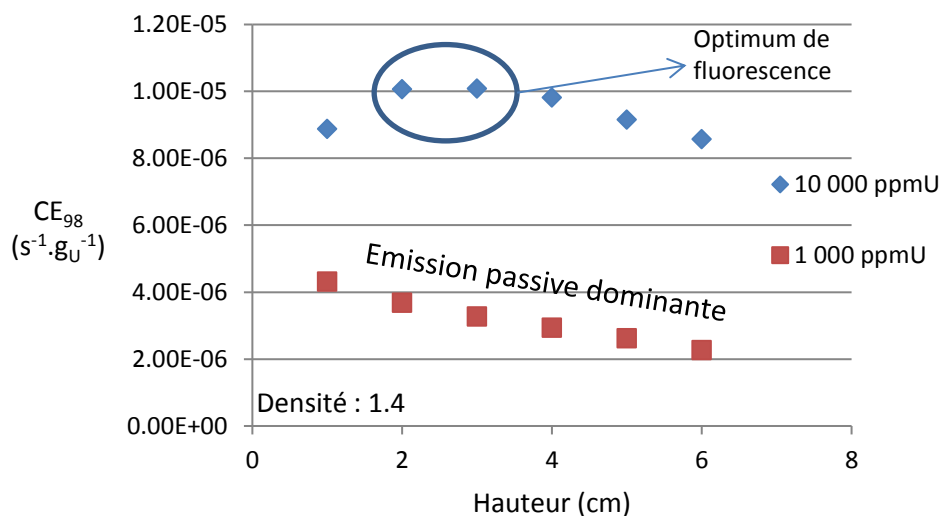


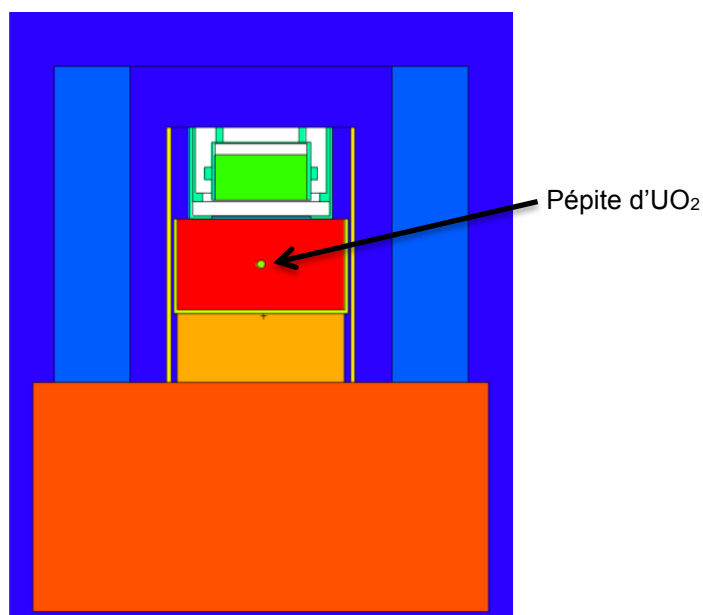
Figure 58 : Coefficient d'étalonnage  $CE_{98}$  en fonction de la hauteur de remplissage pour deux teneurs en uranium.

## II.5 Effet d'une hétérogénéité potentielle de l'échantillon

### II.5.1 Hétérogénéités simulées

Le dernier effet pris en compte sur les indicateurs de la teneur en uranium (raies à 92 et 98 keV) est celui de l'hétérogénéité de l'échantillon. Pour la décrire, il a été décidé de simuler deux types d'hétérogénéité :

- une pépite d'UO<sub>2</sub> (densité égale à 11) qui concentre tout l'uranium au centre de l'échantillon. Le reste de l'échantillon est composé de sable SiO<sub>2</sub>. Si l'on considère dans le cas homogène (densité de 1.4 et hauteur de 6 cm) une teneur de 1 000 ppm<sub>U</sub>, alors le rayon de la pépite d'UO<sub>2</sub> qui permet de concentrer toute la masse en uranium (0.798 g<sub>U</sub>) est de 0.264 cm. Cette hétérogénéité est notée **H1**.
- une pépite d'UO<sub>2</sub> (densité égale à 11) de 0.2 cm de rayon, soit une masse d'uranium de 0.343 g<sub>U</sub>. Comme le rayon de la pépite est plus petit que dans le 1<sup>er</sup> cas d'hétérogénéité, le reste de l'uranium (0.455 g<sub>U</sub>) est dilué dans le sable SiO<sub>2</sub>. Ainsi, si l'on considère dans le cas homogène une teneur en uranium de 1 000 ppm<sub>U</sub> pour une densité de 1.4 et une hauteur de remplissage de 6 cm, cela équivaut à concentrer 43 % de la masse de l'uranium total de l'échantillon dans la pépite et 57 % dans le sable SiO<sub>2</sub>. Cette hétérogénéité est notée **H2**.



**Figure 59 : Modèle MCNP des hétérogénéités H1 et H2. Dans le cas H1 tout l'uranium est dans la pépite. Dans le cas H2, l'uranium est réparti dans la pépite et dans le sable SiO<sub>2</sub>.**

Nous disposons actuellement de trois formules donnant la teneur en uranium du minerai :

$$Cm_U(1001 \text{ keV}) = \frac{S_n(1001 \text{ keV})}{Tc \times Mech \times CE_{1001}} \quad (\text{Eq. 2.1})$$

$$Cm_U(92 \text{ keV}) = \frac{S_n(92 \text{ keV})}{Tc \times Mech \times (CE_{234Th} + CE_{235U})} \quad (\text{Eq. 2.2})$$

$$Cm_U(98 \text{ keV}) = \frac{S_n(98 \text{ keV})}{Mech \times \sum_{E_\gamma} [n_{f_{UO}}(E_\gamma, d, h) \times S_{nette}(E_\gamma)] + Tc \times Mech \times (CE_{234mPa} + CE_{223Ra} + CE_{226Ra})} \quad (\text{Eq. 2.3})$$

Trois pépites équivalentes à un échantillon d'uranium homogène de 100 ppm<sub>U</sub>, 1 000 ppm<sub>U</sub> et 10 000 ppm<sub>U</sub> et en équilibre radioactif ont été simulées. Les masses respectives en uranium de chaque pépite, ainsi que les rayons induits de la pépite sont représentés dans le tableau suivant.

**Tableau 7 : Récapitulatif des trois pépites simulées : teneur, masse d'uranium et rayon**

| Teneur en uranium dans le cas homogène | Masse d'uranium pépité H1            | Rayon de la pépité H1 |
|--|--------------------------------------|-----------------------|
| 100 ppm <sub>U</sub>                   | $7.98 \times 10^{-2}$ g <sub>U</sub> | 1.23 mm               |
| 1 000 ppm <sub>U</sub>                 | $7.98 \times 10^{-1}$ g <sub>U</sub> | 2.64 mm               |
| 10 000 ppm <sub>U</sub>                | 7.98 g <sub>U</sub>                  | 5.7 mm                |

Le tableau suivant représente les teneurs en uranium obtenues dans les cas d'échantillons homogènes et hétérogènes, simulés par MCNP, pour 100, 1 000 et 10 000 ppm<sub>U</sub>. Les rendements de fluorescence et les efficacités utilisés sont ceux calculés dans le cas homogène pour une teneur en uranium de 1 000 ppm<sub>U</sub>.

**Tableau 8 : Concentrations massiques  $C_{mU}$  calculées dans les cas homogène et hétérogène avec les raies à 92, 98 et 1001 keV. Entre parenthèses, le ratio des teneurs calculées par rapport à la teneur vraie.**

| ppm <sub>U</sub> | Homogène        |                |                | H1             |               |                 | H2             |               |               |
|------------------|-----------------|----------------|----------------|----------------|---------------|-----------------|----------------|---------------|---------------|
|                  | 1001 keV        | 92 keV         | 98 keV         | 1001 keV       | 92 keV        | 98 keV          | 1001 keV       | 92 keV        | 98 keV        |
| 100              | 103<br>(1.03)   | 102<br>(1.02)  | 123<br>(1.23)  | 111<br>(1.1)   | 36<br>(0.36)  | 1145<br>(11.5)  | Non simulé     | Non simulé    | Non simulé    |
| 1 000            | 1027<br>(1.03)  | 1013<br>(1.01) | 1042<br>(1.04) | 1037<br>(1.04) | 198<br>(0.2)  | 6965<br>(7)     | 1049<br>(1.05) | 690<br>(0.69) | 3645<br>(3.6) |
| 10 000           | 10274<br>(1.03) | 8892<br>(0.89) | 9643<br>(0.96) | 9574<br>(0.96) | 895<br>(0.09) | 19220<br>(1.92) | Non simulé     | Non simulé    | Non simulé    |

Les résultats avec des échantillons homogènes montrent que les formules  $C_{mU}(92 \text{ keV})$  et  $C_{mU}(98 \text{ keV})$  sont représentatives de la teneur en uranium. Cependant, lorsque l'échantillon devient hétérogène, l'utilisation de la seule aire nette de la raie à 92 keV induit une sous-estimation de la teneur en uranium alors qu'utiliser la seule aire nette à 98 keV induit une surestimation. En effet, lorsque l'uranium est concentré au centre de l'échantillon, les émissions passives subissent une forte auto-absorption dans la pépité de densité et de numéro atomique élevés. La fluorescence X est à l'inverse favorisée dans le cas d'une pépité dense au centre de l'échantillon où les phénomènes de diffusion Compton et d'absorption photoélectrique sont favorisés. On note, dans le cas de l'hétérogénéité H1 à 10 000 ppm<sub>U</sub>, que la teneur calculée avec la raie à 98 keV semble plus représentative de la teneur en uranium « vraie » que celle calculée avec la raie à 92 keV. Une teneur en uranium différente obtenue avec les deux méthodes pourrait donc indiquer une hétérogénéité.

## II.5.2 Translation de la pépité

Les trois pépites sont ensuite placées au sein d'un échantillon rempli de sable SiO<sub>2</sub>, de 6 cm de hauteur et de 11 cm de diamètre. Chaque pépité subit 6 translations horizontales dans l'échantillon allant du centre de l'échantillon à son bord, et 5 translations verticales allant du haut de l'échantillon à sa base. Chaque translation équivaut à un pas de 1 cm.

Par la suite, chaque teneur en uranium est calculée via les raies présentes dans les spectres simulés à 92 keV, 98 keV et 1001 keV avec les équations (Eq. 2.1), (Eq. 2.2) et (Eq. 2.3). Les efficacités de détection et les rendements de fluorescence utilisés sont ceux du cas homogène à 1000 ppm<sub>U</sub>.

### II.5.2.1 Translation horizontale de la pépité dans l'échantillon

La pépité est placée proche du détecteur (1 cm) afin d'augmenter le signal utile des raies à 92, 98 et 1001 keV dans les spectres simulés. La pépité subit ensuite une translation horizontale dans l'échantillon avec un pas de 1 cm. Il est à noter que dans le cas à 10 000 ppm<sub>U</sub>, la pépité est trop volumineuse pour subir une translation de 5 cm. Les teneurs  $C_{mU}(92 \text{ keV})$ ,  $C_{mU}(98 \text{ keV})$  et  $C_{mU}(1001 \text{ keV})$  sont ensuite calculées pour chaque translation de la pépité (voir Tableau 9).

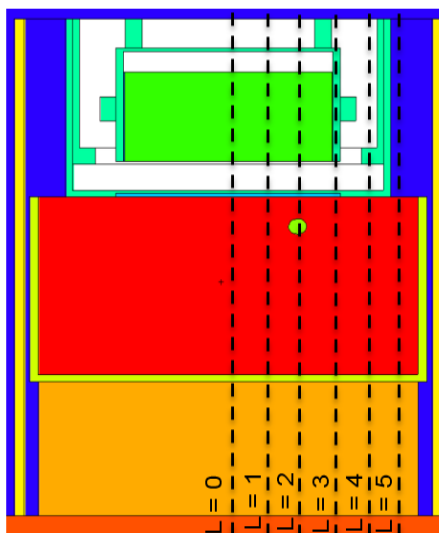


Figure 60 : Modèle MCNP des translations horizontales de la pépité

 Tableau 9 : Concentrations massiques  $C_{mU}$  (en ppm<sub>U</sub>) calculées dans le cas des translations horizontales de la pépité via les raies à 9298 et 1001 keV

| Teneur cas homogène<br>Raie utilisée | 100 ppm <sub>U</sub> |          |        | 1000 ppm <sub>U</sub> |          |        | 10 000 ppm <sub>U</sub> |          |        |
|--------------------------------------|----------------------|----------|--------|-----------------------|----------|--------|-------------------------|----------|--------|
|                                      | 92 keV               | 1001 keV | 98 keV | 92 keV                | 1001 keV | 98 keV | 92 keV                  | 1001 keV | 98 keV |
| Translation L (cm)                   |                      |          |        |                       |          |        |                         |          |        |
| L = 0                                | 136                  | 292      | 3504   | 697                   | 2736     | 15825  | 3442                    | 23616    | 28575  |
| L = 1                                | 129                  | 279      | 3328   | 661                   | 2599     | 15326  | 3262                    | 22748    | 28252  |
| L = 2                                | 106                  | 242      | 2801   | 543                   | 2265     | 13724  | 2689                    | 19578    | 26843  |
| L = 3                                | 73                   | 188      | 2014   | 375                   | 1762     | 10772  | 1840                    | 15326    | 23516  |
| L = 4                                | 41                   | 138      | 1162   | 208                   | 1254     | 6899   | 1010                    | 10827    | 17797  |
| L = 5                                | 21                   | 98       | 601    | 103                   | 908      | 3906   | x                       | x        | x      |

On remarque que la teneur réelle de l'échantillon (100, 1 000 ou 10 000 ppm<sub>U</sub>) est toujours comprise entre  $C_{mU}(92\text{ keV})$  et  $C_{mU}(98\text{ keV})$  pour toutes les translations horizontales excepté pour trois positions de la pépité : L = 0 cm, L = 1 cm et L = 2 cm (en rouge dans le Tableau 9). En effet, à ces positions, la pépité étant proche du détecteur, les atténuations induites par le sable SiO<sub>2</sub> sont très faibles et ne compensent pas l'auto-absorption dans la pépité (effet d'angle solide). Cependant, dans tous les cas, la différence entre les teneurs en uranium mesurées par  $C_{mU}(92\text{ keV})$  et  $C_{mU}(98\text{ keV})$  est un indicateur pertinent de l'hétérogénéité de l'échantillon. De plus, on remarque que la raie à 1001 keV, traditionnellement utilisée pour mesurer la teneur en uranium d'un échantillon, est fortement impactée par le positionnement de la pépité. En effet, si celle-ci est située proche du détecteur (1 cm pour L = 1 à 3 cm), la surestimation de la teneur réelle de l'échantillon atteint un facteur 2 à 3. Un indicateur d'hétérogénéité potentielle nécessitant dans ce cas un nouveau concassage de l'échantillon est donc essentiel pour mesurer la teneur en uranium d'un échantillon peu concassé, même avec la raie à 1001 keV.

### II.5.2.2 Translation verticale de la pépité dans l'échantillon

La pépité est placée au centre de l'échantillon et subit désormais une translation verticale dans l'échantillon avec un pas de 1 cm. Les teneurs  $C_{mU}(92\text{ keV})$ ,  $C_{mU}(98\text{ keV})$  et  $C_{mU}(1001\text{ keV})$  sont ensuite calculées pour chaque translation de la pépité (voir Tableau 10).

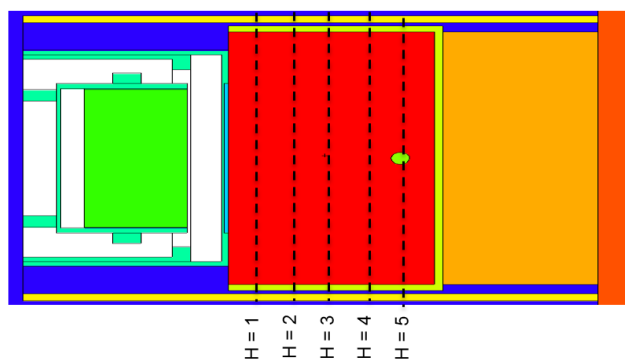


Figure 61 : Modèle MCNP des translations verticales de la pépité

 Tableau 10: Concentrations massiques  $C_{mU}$  (en ppmu) calculées dans le cas des translations horizontales de la pépité via les raies à 92,98 et 1001 keV

| Teneur cas homogène<br>$C_{mU}$ -Raie utilisée | 100 ppm <sub>U</sub> |          |        | 1000 ppm <sub>U</sub> |          |        | 10 000 ppm <sub>U</sub> |          |        |
|--|----------------------|----------|--------|-----------------------|----------|--------|-------------------------|----------|--------|
|  | 92 keV               | 1001 keV | 98 keV | 92 keV                | 1001 keV | 98 keV | 92 keV                  | 1001 keV | 98 keV |
| Translation H (cm)                             |                      |          |        |                       |          |        |                         |          |        |
| H = 5  | 14                   | 51       | 411    | 69                    | 488      | 3044   | 356                     | 4266     | 11883  |
| H = 4  | 23                   | 75       | 669    | 117                   | 695      | 4627   | 590                     | 6105     | 15546  |
| H = 3  | 39                   | 111      | 1118   | 199                   | 1037     | 7096   | 991                     | 8992     | 19623  |
| H = 2  | 71                   | 175      | 1951   | 368                   | 1628     | 10765  | 1833                    | 13957    | 24238  |
| H = 1  | 136                  | 292      | 3504   | 697                   | 2736     | 15825  | 3442                    | 23616    | 28575  |

On remarque, ici encore, l'encadrement de la teneur réelle de l'échantillon par  $C_{mU}(92\text{ keV})$  et  $C_{mU}(98\text{ keV})$  excepté pour une position de la pépité (même cas que précédemment lorsque la pépité est située à 1 cm du détecteur). Cependant, dans tous les cas, la différence entre les teneurs en uranium mesurées par  $C_{mU}(92\text{ keV})$  et  $C_{mU}(98\text{ keV})$  est un indicateur pertinent de l'hétérogénéité de l'échantillon. De plus, comme pour la translation horizontale de la pépité, l'impact de l'hétérogénéité sur  $C_{mU}(1001\text{ keV})$ , traditionnellement utilisée comme teneur de référence de l'échantillon, reste important. En effet, si celle-ci est située au plus loin du détecteur (5 cm), il est possible de sous-estimer d'un facteur 2 la teneur réelle de l'échantillon, et inversement si elle est proche, la surestimation peut atteindre un facteur 2 à 3.

### II.5.2.3 Conclusion sur l'effet pépité

En conclusion, la présence d'une hétérogénéité forte dans l'échantillon (pépité pure en uranium, sans dilution dans l'échantillon) peut être observée par comparaison entre  $C_{mU}(92\text{ keV})$  et  $C_{mU}(98\text{ keV})$ . De plus, la teneur mesurée à 1001 keV est aussi fortement impactée par l'hétérogénéité de l'échantillon, une sous-estimation de plus d'un facteur 2 (pépité située loin du détecteur) peut être commise sur la teneur réelle du minerai ou une surestimation d'un facteur 2 à 3 (pépité située proche du détecteur).

Dans le cas d'une dilution de la pépité (cas H2), il s'avère que les résultats tendent vers le cas homogène. Il est donc évident que plus la pépité est diluée, plus les résultats tendent vers ceux du cas homogène.

Il sera donc intéressant d'analyser les résultats expérimentaux obtenus par ORANO Mining (décrits dans la partie suivante) où quelques échantillons présentent des valeurs  $C_{mU}(92\text{ keV})$  et  $C_{mU}(98\text{ keV})$  très différentes (voir Figure 64 et Figure 65), en dehors des incertitudes de mesures, reflétant de possibles hétérogénéités pour ces échantillons concassés grossièrement au marteau.

On considérera, à la lumière des résultats présentés précédemment, qu'une hétérogénéité est probable lorsque le ratio  $\frac{C_{mU}(98 \text{ keV})}{C_{mU}(92 \text{ keV})}$  est supérieur à 2. Ce seuil est arbitraire et pourrait être affiné (à la baisse) pour tenir compte d'hétérogénéités moins marquées et des incertitudes de mesure. Le critère pourrait ainsi être le non recouvrement des barres d'erreur des teneurs  $C_{mU}(92 \text{ keV})$  et  $C_{mU}(98 \text{ keV})$ .

## II.6 Etudes expérimentales

### II.6.1 Mesures réalisées par ORANO

#### II.6.1.1 Echantillons et géométrie de mesure

Dans le cadre de mesures de déséquilibres réalisées par ORANO Mining en Mongolie sur les gîtes de Dulann Uul et Zoovch Ovoo [7], le Laboratoire de Mesures Nucléaires a eu à disposition des spectres d'échantillons de minerai d'uranium obtenus grâce à un détecteur Falcon 5000 [16]. Les échantillons mesurés ont des densités et des hauteurs de remplissage différentes. Le minerai a été concassé grossièrement au marteau et mis en flacons (Figure 62) de même dimensions que ceux simulés auparavant. La géométrie de mesure utilisée étant celle décrite précédemment au § II.2, on peut utiliser les rendements de fluorescence calculés au § II.4.2 pour les différentes hauteurs et densités. Afin de faciliter la mise en œuvre de la méthode, une étude multiparamétrique est présentée en annexe A.3.

L'étude présentée ici va permettre de tester expérimentalement les formules  $C_{mU}(92 \text{ keV})$  et  $C_{mU}(98 \text{ keV})$ . Chaque échantillon a déjà été étudié par spectrométrie gamma pour connaître sa teneur en uranium (utilisation de la raie à 1001 keV) et son déséquilibre (utilisation de la raie à 185 keV). Les temps de comptage étant longs (de 2 h à 20 h), pour obtenir une faible incertitude sur le nombre de coups dans la raie à 1001 keV sur les spectres (8 %), les statistiques de comptage moyennes associées aux raies à 92 keV et 98 keV sont bonnes (respectivement 0.96 % et 7 %).

La majorité des 76 échantillons ont des teneurs en uranium comprises entre 0 et 2 000 ppm<sub>U</sub>. Seuls deux échantillons ont une teneur nettement plus grande : 5 132 ppm<sub>U</sub> et 13 632 ppm<sub>U</sub>. Les effets d'auto-atténuation sur la teneur mesurée seront donc généralement faibles aux vues des teneurs étudiées. De ce fait, comme signalé dans l'annexe A.3, la teneur en uranium n'est pas prise en compte dans le calcul des efficacités de détection et rendements de fluorescence.

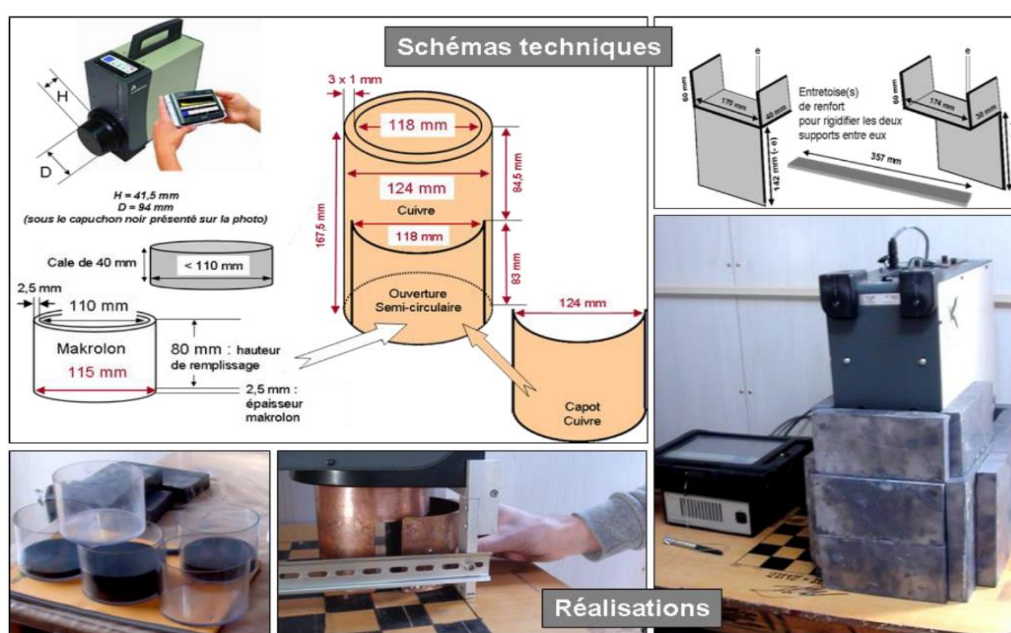


Figure 62 : Schémas et photographies de la géométrie de mesure.

### II.6.1.2 Paramètres d'acquisition

Les paramètres d'acquisition pour le traitement numérique des impulsions issues de l'électronique de comptage du détecteur Falcon 5000 d'ORANO Mining ont été laissés tels que réglés en usine pour cette mesure des échantillons de minerai d'uranium. Ces valeurs, qui sont aussi les valeurs initiales à la réception du détecteur Falcon 5000 au Laboratoire de Mesures Nucléaires, seront appelées *Configuration n°1* :

- **LTC mode = OFF** : si ce mode était en position ON, cela permettrait d'activer le circuit de rejet des empilements (un autre paramètre serait alors utilisé : PUR GARD = 1.1 par défaut, c'est-à-dire que toute impulsion arrivant dans un laps de temps inférieur à 1.1 x (Flat Top + Rise time) est rejetée) et le système de correction de temps actif ;
- **LT Trim = 500** : ce paramètre permet d'ajuster la correction de temps mort à fort taux de comptage, avec une plage de réglage comprise entre 0 et 1 000 ;
- **Rise Time = 5.6 µs** : temps de montée et de descente (identiques) de mise en forme trapézoïdale de l'impulsion ;
- **Flat Top = 0.8 µs** : temps de plateau lors de la mise en forme trapézoïdale de l'impulsion.

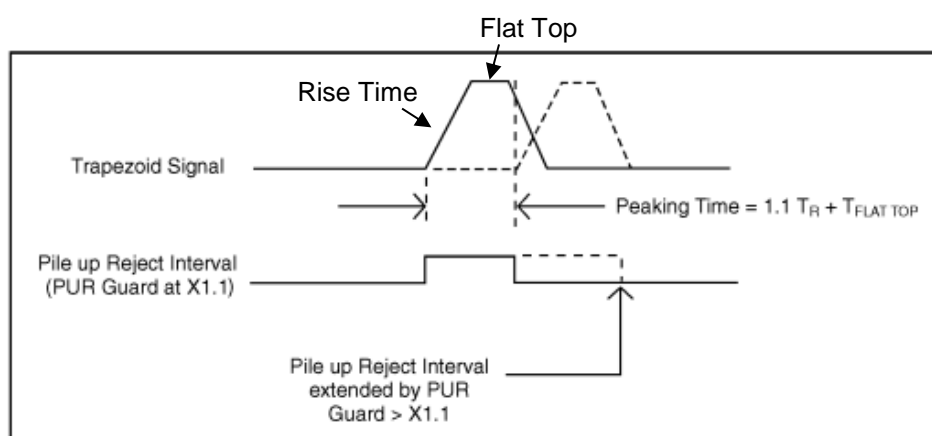


Figure 63 : mise en forme trapézoïdale de l'impulsion et PUR GUARD [49]

Nous verrons par la suite qu'elles doivent être optimisées afin de bien corriger les pertes de comptage dues au temps mort sur une plus large gamme de teneurs en uranium (jusqu'à 100 000 ppm<sub>U</sub>) lors des mesures réalisées au LMN (voir § II.6.2).

### II.6.1.3 Mesure de la teneur en uranium

Chaque échantillon étant de taille et de densité différentes, un rendement de fluorescence a donc été calculé pour chacun d'entre eux avec MCNP (voir annexe A.3). Le rendement de fluorescence a été calculé aux 6 énergies précisées dans le paragraphe 4.2.2. Il est à noter que ces 6 raies contribuent en moyenne à 78 % du signal de fluorescence quel que soit la densité, la hauteur de remplissage et la teneur en uranium de l'échantillon (voir annexe A.3). Un facteur correctif reflétant les 22 % de fluorescence non pris en compte a donc été implémenté dans la formule  $Cm_U(98\text{ keV})$  afin de corriger ce phénomène :

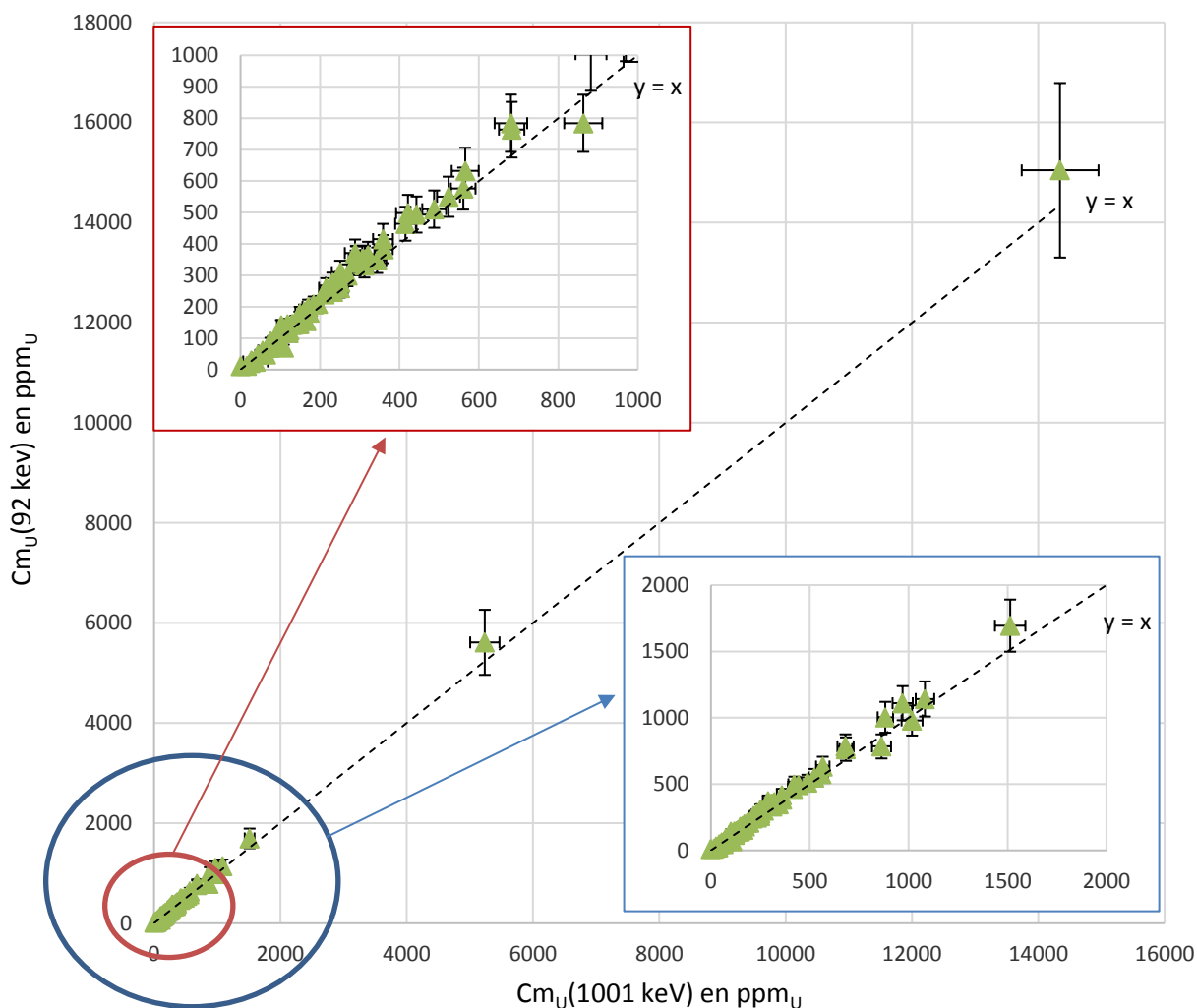
$$Cm_U(98\text{ keV}) = \frac{Sn(98\text{ keV})}{\frac{1}{0.78} \times M_{ech} \times \sum_{E_\gamma} [\eta_{fluo}(E_\gamma, d, h) \times S_{nette}(E_\gamma)] + Tc \times M_{ech} \times (CE_{234mPa} + CE_{223Ra} + CE_{226Ra})}$$

Avec  $E_\gamma = [185\text{ keV}, 242\text{ keV}, 295\text{ keV}, 352\text{ keV}, 609\text{ keV}, 1120\text{ keV}]$

La géométrie du détecteur Falcon modélisée est basée sur une description générique du cristal Ge (modèle BGe 2830). Les efficacités retenues à 92 keV, 98 keV et 1001 keV sont celles obtenues par ISOCS (annexe A.4). L'incertitude associée à ces efficacités est de l'ordre de 10 % pour 92 keV et 98 keV et de

5 % pour 1001 keV. Le rendement de fluorescence est calculé avec MCNP. Notons que comme les teneurs en uranium mesurées restent faibles (inférieures à 20 000 ppm<sub>U</sub>), aucune correction due à l'auto-atténuation de l'uranium sur le signal de la raie à 92 keV et 98 keV n'est réalisée sur ces mesures.

Les graphiques suivants représentent les teneurs calculées à l'aide de l'aire nette de la raie à 92 keV en fonction de la teneur calculée avec la raie à 1001 keV qui est considérée comme référence dans les mesures réalisées par ORANO Mining. Les différentes incertitudes ont été calculées pour chaque échantillon en considérant ceux-ci homogènes et en suivant la méthodologie décrite dans le § II.7.



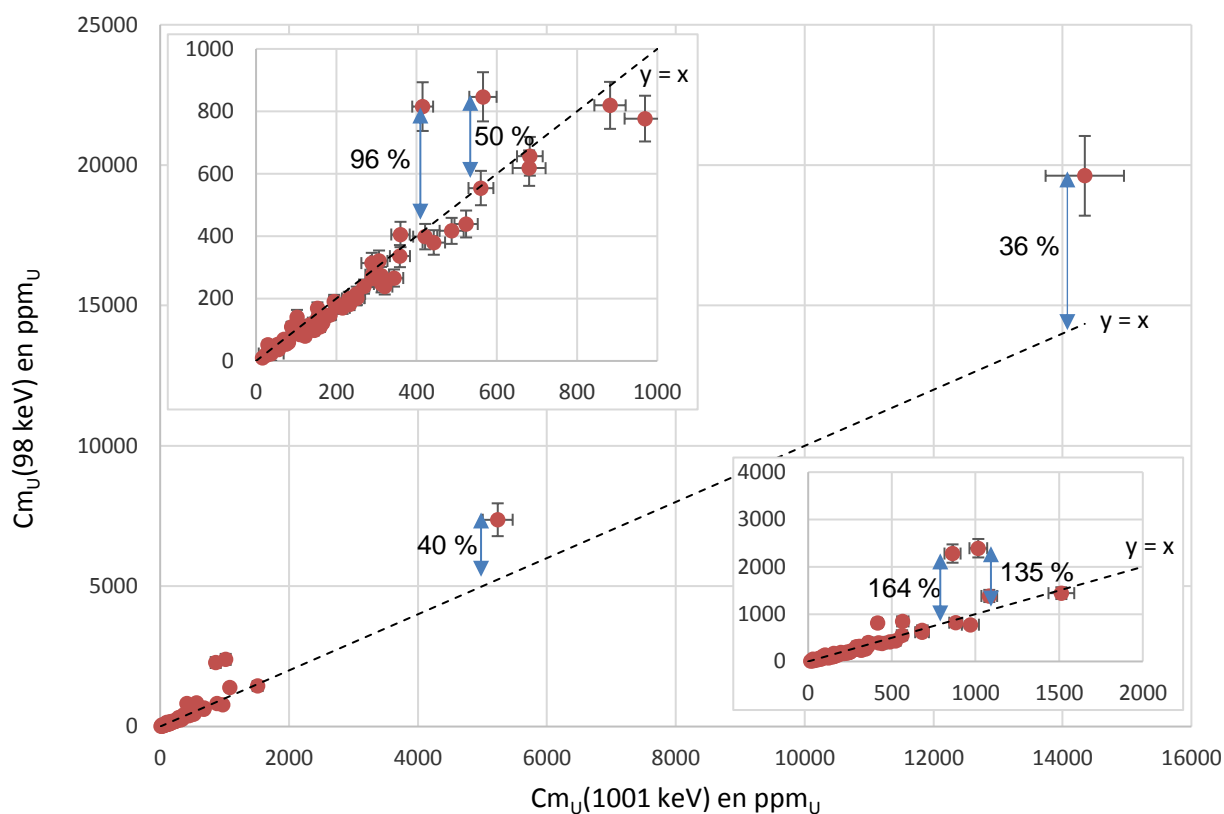
**Figure 64 : Concentration massique  $Cm_U(92 \text{ keV})$  en fonction de la concentration massique  $Cm_U$  théorique.**

La raie à 92 keV permet donc de déterminer correctement la teneur en uranium en des temps très courts (voir § II.6.1.4) par rapport à la raie à 1001 keV.

**Remarque :** Afin de diminuer les incertitudes de mesures, un détecteur Falcon mis à disposition par ORANO pour le Laboratoire de Mesures Nucléaires a été finement caractérisé (scanning gamma ultra-collimaté) et modélisé ; les résultats sont présentés au § II.6.2 sur de nouveaux échantillons étudiés.

Le graphique suivant représente la teneur en uranium calculée à l'aide de la raie à 98 keV en fonction de la teneur obtenue avec la raie à 1001 keV. Les différentes incertitudes ont été calculées pour chaque échantillon en considérant ceux-ci homogènes et en suivant la méthodologie décrite dans le § II.7.





**Figure 65 : Concentration massique  $Cm_U(98 \text{ keV})$  en fonction de la concentration massique  $Cm_U$  théorique.**

La plupart des teneurs des échantillons sont bien déterminées avec la raie à 98 keV. Seulement 7 points sur 76 ne sont pas en cohérence avec la teneur de l'échantillon obtenue avec la raie à 1001 keV. Ces écarts sont possiblement dus à une hétérogénéité présente dans ces échantillons. Par exemple, pour l'échantillon à 863 ppm<sub>U</sub>,  $Cm_U(92 \text{ keV})$  donne 784 ppm<sub>U</sub> et  $Cm_U(98 \text{ keV})$  conduit à 2 280 ppm<sub>U</sub> soit un ratio  $\frac{Cm_U(98 \text{ keV})}{Cm_U(92 \text{ keV})}$  supérieur à 2. Ces valeurs sont similaires à celles observées dans le Tableau 8 pour la pépite d'UO<sub>2</sub> (hétérogénéité **H2**) étudiée par simulation. Pour les deux cas où la teneur est forte (5 132 ppm<sub>U</sub> et 13 632 ppm<sub>U</sub>), rappelons qu'un rendement de fluorescence calculé pour la teneur de l'échantillon de référence de 1 000 ppm<sub>U</sub> a été utilisé pour établir la formule  $Cm_U(98 \text{ keV})$  (équation (Eq. 2.3)). Or nous avons vu que celui-ci diminue en moyenne de 13 % entre une teneur de 1 000 et 10 000 ppm<sub>U</sub> (Figure 52). L'écart observé de 40 % et 36 % respectivement à 5 132 et 13 632 ppm<sub>U</sub> serait donc encore plus grand dans le cas de l'utilisation d'un rendement de fluorescence calculé pour les teneurs appropriées. La prise en compte de la teneur réelle des échantillons supposés homogènes n'expliquant pas ici les écarts observés pour les deux échantillons de forte teneur, une autre cause possible est la présence d'une faible hétérogénéité des échantillons, caractérisée par un ratio  $\frac{Cm_U(98 \text{ keV})}{Cm_U(92 \text{ keV})}$  inférieur à 2 (seuil arbitrairement fixé pour annoncer un risque d'hétérogénéité, voir § II.5.2.3).

**Remarque :** la teneur en uranium sera prise en compte dans le calcul des rendements de fluorescence et efficacités de détection pour les mesures des 38 échantillons supplémentaires au LMN, voir § II.6.2.

#### II.6.1.4 Gain potentiel sur le temps d'acquisition et incertitude associée

Le gain en temps de mesure a été calculé, pour chaque échantillon, en comparant l'incertitude statistique relative du signal net de la raie à 1001 keV avec celles des raies à 92 keV et 98 keV (voir Annexe A.5). Ces incertitudes prennent en compte l'estimation et la soustraction du continuum de Compton sous les pics. Comme les aires nettes suivent une loi de Poisson, le rapport élevé au carré des incertitudes relatives

à 1001 keV et à 92 keV ou 98 keV permet de déduire le gain potentiel sur le temps d'acquisition. Ainsi, pour les échantillons étudiés par ORANO Mining, on trouve un gain moyen d'un facteur **65** pour  $Cm_U(92 \text{ keV})$  et de **2** pour  $Cm_U(98 \text{ keV})$ , avec cependant d'importantes fluctuations en fonction de l'échantillon étudié (densité, hauteur, teneur en uranium, déséquilibre radioactif, présence d'hétérogénéités). Pour  $Cm_U(98 \text{ keV})$ , aucun gain n'est observé pour de très faibles teneurs en uranium (à savoir moins de 200 ppm<sub>U</sub>) car l'auto-fluorescence X de l'uranium dans ces échantillons est trop faible. A l'inverse, pour les fortes teneurs en uranium, le gain croît rapidement car l'auto-fluorescence augmente avec le carré de la teneur. Par exemple, le gain en temps d'acquisition pour l'échantillon de 14 000 ppm<sub>U</sub> est d'un facteur 8. Le gain associé à  $Cm_U(92 \text{ keV})$  fluctue aussi d'un échantillon à l'autre, mais dépend beaucoup moins de la concentration en uranium sur la plage de teneurs étudiée (faible phénomène d'auto-atténuation).

Notons qu'en cas d'homogénéité de l'échantillon garantie avec un broyage fin de celui-ci, seule la raie à 92 keV reste nécessaire car celle à 98 keV permet de détecter une éventuelle hétérogénéité, et donc le gain en temps d'acquisition est d'environ un facteur 65. Au niveau des incertitudes associées, lorsque l'homogénéité de l'échantillon est assurée, l'incertitude sur la teneur en uranium calculée par  $Cm_U(92 \text{ keV})$  est essentiellement due à l'incertitude sur l'efficacité à 92 keV calculée par ISOCS (10 %). Si l'on considère que les incertitudes sur la densité et la hauteur de remplissage de l'échantillon sont négligeables car ces paramètres sont maîtrisables, l'incertitude sur l'efficacité à 92 keV est majoritairement due à la minéralogie non connue de l'échantillon (§ II.3.3.4) ainsi qu'à la modélisation du cristal GeHP du détecteur Falcon 5000. Une fois ce cristal bien caractérisé par des mesures collimatées avec des sources étalon, les incertitudes liées à sa géométrie pourront être diminuées (voir la partie suivante).

Lorsque l'homogénéité de l'échantillon n'est pas assurée, l'incertitude est plus délicate à estimer en raison du caractère difficilement quantifiable de l'hétérogénéité, qui devient la cause d'incertitude dominante. Par exemple, dans le cas d'une forte hétérogénéité à 1 000 ppm<sub>U</sub>, où tout l'uranium se retrouve concentré dans une pépite au centre de l'échantillon, la teneur en uranium  $Cm_U(92 \text{ keV})$  peut sous-estimer la valeur réelle d'un facteur 5 tandis que  $Cm_U(98 \text{ keV})$  peut la surestimer d'un facteur 7 (Tableau 8). Mais cet écart permet de prévenir l'opérateur qu'un broyage plus fin de l'échantillon est nécessaire [50], [51].

## II.6.2 Mesures réalisées par le Laboratoire de Mesures Nucléaires

### II.6.2.1 Optimisation de la modélisation du détecteur Falcon

Cette partie a pour but de modéliser le détecteur GeHP - Falcon 5000 mis à disposition au Laboratoire de Mesures Nucléaires. Cette modélisation servira par la suite sur des mesures d'échantillons de minerai d'uranium au sein même du laboratoire. La caractérisation initiale du détecteur Falcon est la même que celle utilisée pour les différentes modélisations utilisées dans les parties précédentes. Les mesures des efficacités de détection ont été réalisées dans l'axe du Falcon 5000 et pour une distance source-détecteur de 10 et 30 cm (Figure 66). Les sources utilisées sont le  $^{133}\text{Ba}$ , l' $^{241}\text{Am}$ , l' $^{152}\text{Eu}$  et le  $^{60}\text{Co}$ . Ces 4 sources permettent de balayer une plage d'émission gamma allant de 59 à 1408 keV (voir Tableau 11).

**Tableau 11 : 4 sources utilisées pour mesurer l'efficacité de détection**

| Nucléides         | Energie d'émission (keV) | Intensité d'émission (%) |
|-------------------|--------------------------|--------------------------|
| $^{133}\text{Ba}$ | 81.00                    | 34.06                    |
|                   | 356.02                   | 62.05                    |
| $^{241}\text{Am}$ | 59.54                    | 35.90                    |
| $^{152}\text{Eu}$ | 121.78                   | 28.58                    |
|                   | 344.28                   | 26.50                    |
|                   | 778.90                   | 12.94                    |
|                   | 964.08                   | 14.61                    |
|                   | 1112.07                  | 13.65                    |
| $^{60}\text{Co}$  | 1408.01                  | 21.01                    |
|                   | 1173.50                  | 99.97                    |
|                   | 1332.50                  | 99.99                    |

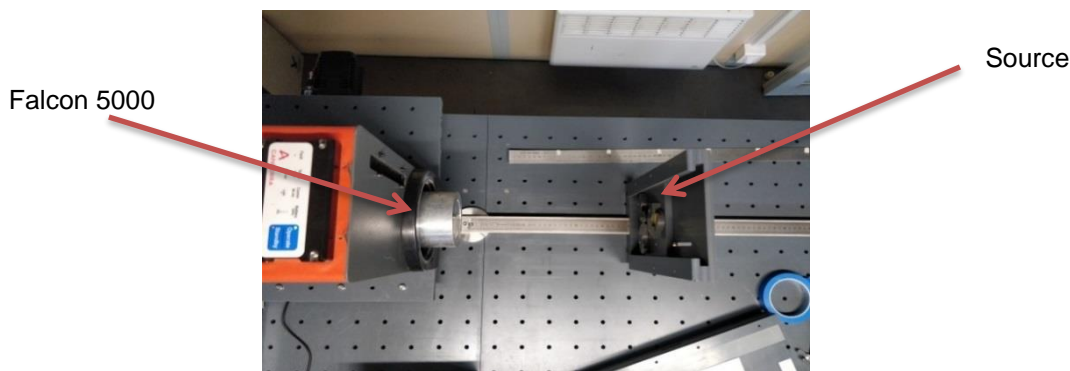


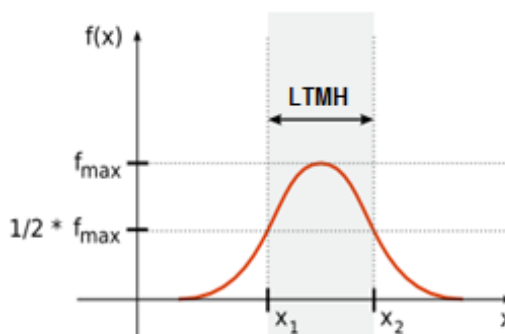
Figure 66 : Mesure de l'efficacité de détection à 30 cm. A droite, le porte source et à gauche le Falcon 5000

- **Largeur à mi-hauteur (FWHM)**

Le Tableau 12 récapitule pour les deux distances source-détecteur (10 et 30 cm) et pour chaque raie, le taux de comptage et la largeur à mi-hauteur (LTMH).

Tableau 12 : Taux de comptage et largeur à mi-hauteur (LTMH) mesurée pour chaque source

| Energie d'émission (keV)      | Taux de comptage (coups.s <sup>-1</sup> ) |       | LTMH (keV) |
|-------------------------------|---|-------|------------|
|                               | 10 cm                                     | 30 cm |            |
| 59.5412 ( <sup>241</sup> Am)  | 1582                                      | 223   | 0.826      |
| 80.9971 ( <sup>133</sup> Ba)  | 1851                                      | 271   | 0.846      |
| 121.7817 ( <sup>152</sup> Eu) | 1009                                      | 149   | 0.914      |
| 344.2785 ( <sup>152</sup> Eu) | 335                                       | 50    | 1.170      |
| 356.017 ( <sup>133</sup> Ba)  | 1022                                      | 154   | 1.182      |
| 778.904 ( <sup>152</sup> Eu)  | 65  | 10    | 1.659      |
| 964.079 ( <sup>152</sup> Eu)  | 58  | 9     | 1.879      |
| 1112.074 ( <sup>152</sup> Eu) | 47  | 7     | 2.023      |
| 1173.501 ( <sup>60</sup> Co)  | 133                                       | 19    | 2.131      |
| 1332.501 ( <sup>60</sup> Co)  | 117                                       | 16    | 2.299      |
| 1408.006 ( <sup>152</sup> Eu) | 57  | 8     | 2.370      |



Dès lors, on peut ajuster une courbe de résolution en énergie du détecteur en utilisant les résolutions expérimentales. La résolution en énergie d'un détecteur est communément exprimée sous la forme :

$$LTMH(E) = a + b\sqrt{E + cE^2}$$

Une analyse paramétrique réalisée avec le solveur Excel se reposant sur la méthode des moindres carrés a permis d'obtenir la valeur des facteurs a, b et c :

$$a = 0.757987314 \text{ keV}, b = 0.00452186 \text{ keV}^{1/2} \text{ et } c = 0.064299703 \text{ keV}^{-1}$$

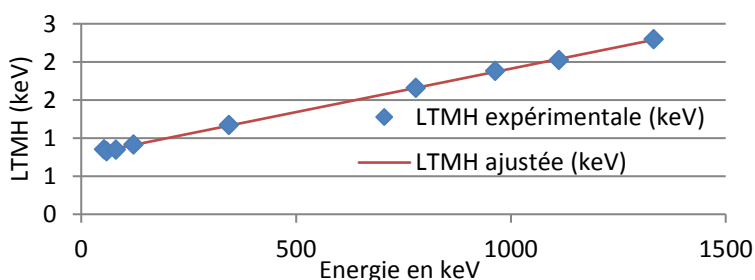


Figure 67 : Résolution expérimentale et calculée suite à l'étude paramétrique

- **Efficacité de détection expérimentale**

L'efficacité de détection, à une distance et à une énergie données, est définie par :

$$Eff(E) = \frac{Sn(E)}{Tc \times A(Source) \times I_E(Source)}$$

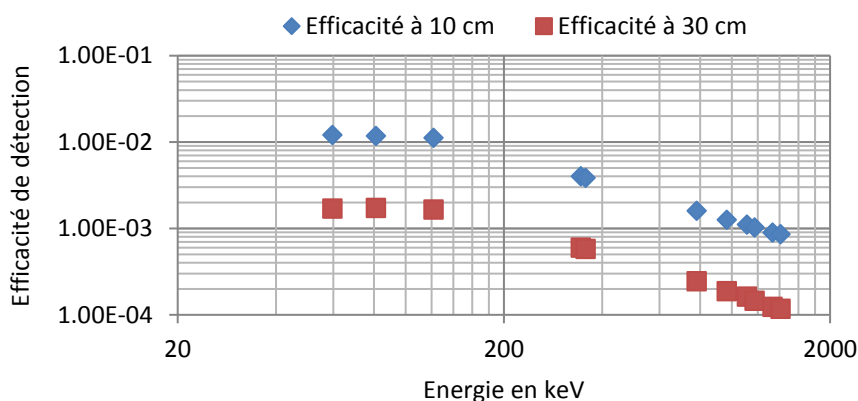
Avec :

- $Sn(E)$  : surface nette de la raie à l'énergie E.
- $Tc$  : temps de comptage (en secondes).
- $A(Source)$  : Activité de la source utilisée (en Bq = s<sup>-1</sup>).
- $I_E(Source)$  : Intensité d'émission correspondant à l'émission d'un rayonnement gamma d'énergie E (nombre de photons émis par désintégration).

Le Tableau 13 représente les efficacités de détection calculées à 10 et 30 cm.

**Tableau 13 : Mesure de l'efficacité de détection à 10 et 30 cm associée au détecteur Falcon 5000**

| Energie d'émission (keV)      | Taux de comptage (coups.s <sup>-1</sup> ) |       | Activité de la source (Bq = s <sup>-1</sup> ) | Intensité d'émission (%) | Efficacité de détection |                         |
|-------------------------------|---|-------|---|--------------------------|-------------------------|-------------------------|
|                               | 10 cm                                     | 30 cm |   |                          | 10 cm                   | 30 cm                   |
| 59.5412 ( <sup>241</sup> Am)  | 1582                                      | 223   | 3.66 x 10 <sup>5</sup>                        | 35.9                     | 1.20 x 10 <sup>-2</sup> | 1.70 x 10 <sup>-3</sup> |
| 80.9971 ( <sup>133</sup> Ba)  | 1851                                      | 271   | 4.27 x 10 <sup>5</sup>                        | 34.06                    | 1.18 x 10 <sup>-2</sup> | 1.73 x 10 <sup>-3</sup> |
| 121.7817 ( <sup>152</sup> Eu) | 1009                                      | 149   | 3.15 x 10 <sup>5</sup>                        | 28.58                    | 1.12 x 10 <sup>-2</sup> | 1.65 x 10 <sup>-3</sup> |
| 344.2785 ( <sup>152</sup> Eu) | 335                                       | 50    | 3.15 x 10 <sup>5</sup>                        | 26.5                     | 4.00 x 10 <sup>-3</sup> | 5.99 x 10 <sup>-4</sup> |
| 356.017 ( <sup>133</sup> Ba)  | 1022                                      | 154   | 4.27 x 10 <sup>5</sup>                        | 62.05                    | 3.85 x 10 <sup>-3</sup> | 5.81 x 10 <sup>-4</sup> |
| 778.904 ( <sup>152</sup> Eu)  | 65  | 10    | 3.15 x 10 <sup>5</sup>                        | 12.942                   | 1.59 x 10 <sup>-3</sup> | 2.45 x 10 <sup>-4</sup> |
| 964.079 ( <sup>152</sup> Eu)  | 58  | 9     | 3.15 x 10 <sup>5</sup>                        | 14.605                   | 1.26 x 10 <sup>-3</sup> | 1.87 x 10 <sup>-4</sup> |
| 1112.074 ( <sup>152</sup> Eu) | 47  | 7     | 3.15 x 10 <sup>5</sup>                        | 13.644                   | 1.10 x 10 <sup>-3</sup> | 1.62 x 10 <sup>-4</sup> |
| 1173.501 ( <sup>60</sup> Co)  | 133                                       | 19    | 1.30 x 10 <sup>5</sup>                        | 99.9736                  | 1.03 x 10 <sup>-3</sup> | 1.45 x 10 <sup>-4</sup> |
| 1332.501 ( <sup>60</sup> Co)  | 117                                       | 16    | 1.30 x 10 <sup>5</sup>                        | 99.9856                  | 8.97 x 10 <sup>-4</sup> | 1.24 x 10 <sup>-4</sup> |
| 1408.006 ( <sup>152</sup> Eu) | 57  | 8     | 3.15 x 10 <sup>5</sup>                        | 21.005                   | 8.59 x 10 <sup>-4</sup> | 1.18 x 10 <sup>-4</sup> |



**Figure 68 : Efficacité de détection expérimentale à 10 et 30 cm**

- Modélisation par données constructeur (MOD01)

Les dimensions du détecteur Falcon 5000 données par le constructeur permettent une première modélisation du détecteur [52]. La Figure 69 représente la modélisation MCNP d'un détecteur Falcon 5000 (MOD01) se basant ces données constructeur. Le système de refroidissement n'a pas été simulé car les rétrodiffusions gamma induites y sont négligeables [17].

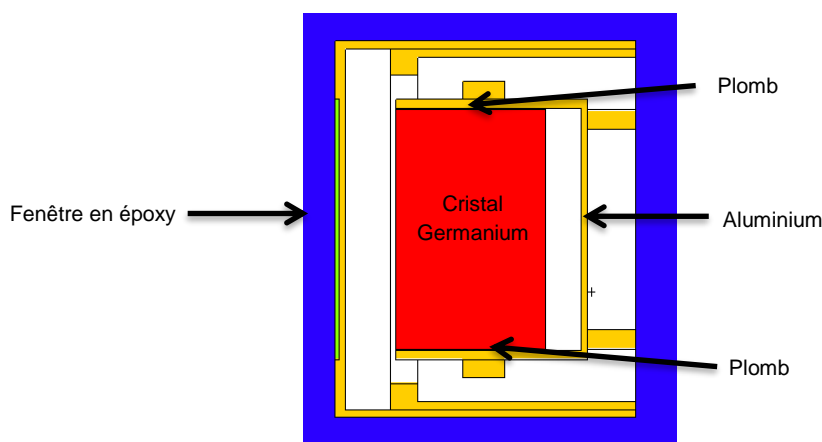


Figure 69 : Falcon 5000 - Modélisation MCNP (MOD01)

Une source ponctuelle placée à 10 et 30 cm de la face avant du détecteur a été simulée avec MCNP afin de calculer les efficacités de détection pour la modélisation MOD01. Ces efficacités de détection sont ensuite comparées aux efficacités expérimentales. Le Tableau 14 récapitule les efficacités expérimentales et modélisées grâce au schéma constructeur ainsi que leur différence relative associée (DR).

Tableau 14 : Comparaison des efficacités de détection expérimentales et modélisées (MOD01)

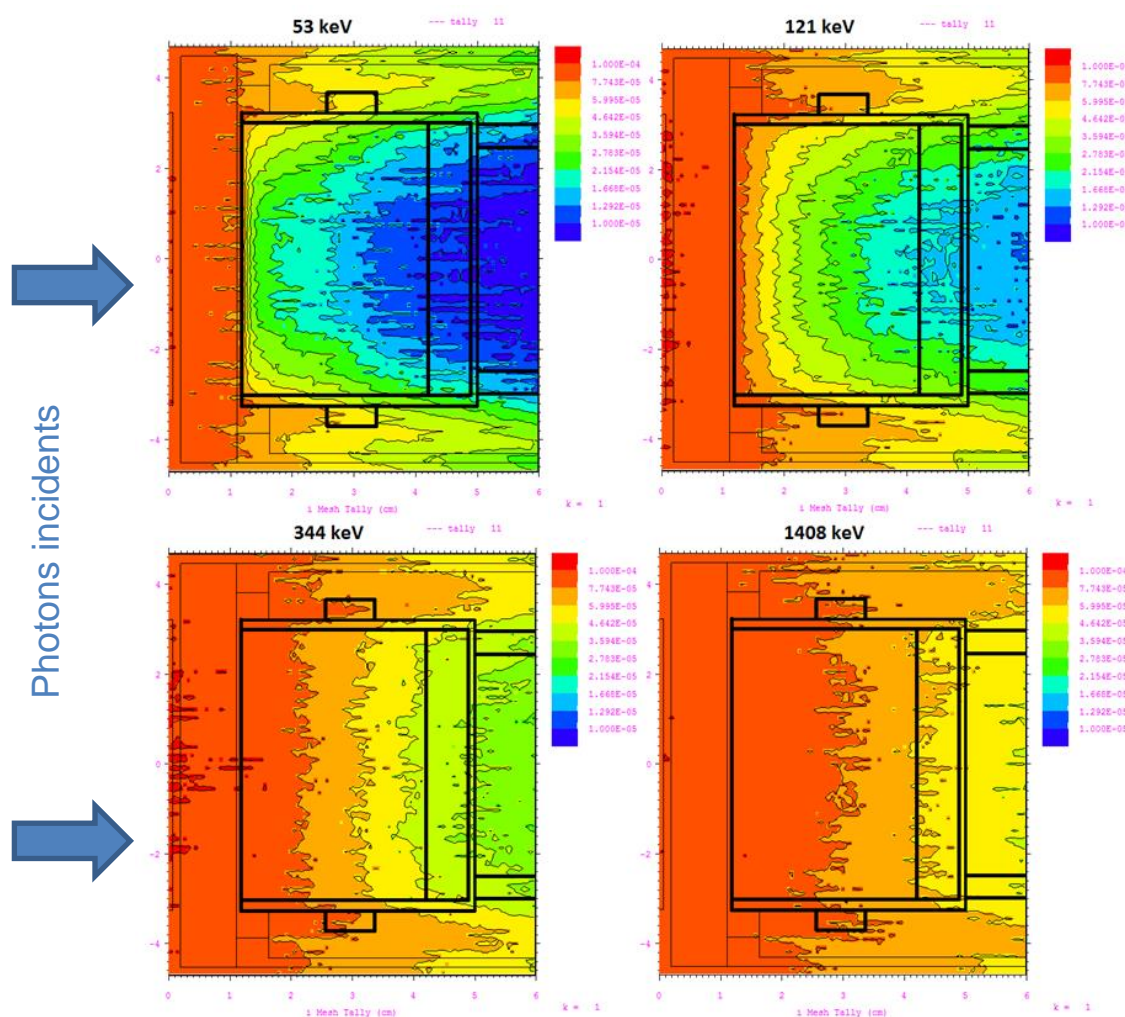
| Energie d'émission (keV)      | Efficacité de détection expérimentale à 10 cm |                         |                | Efficacité de détection expérimentale à 30 cm |                         |                |
|-------------------------------|---|-------------------------|----------------|---|-------------------------|----------------|
|                               | Expérimentale                                 | MOD01                   | DR             | Expérimentale                                 | MOD01                   | DR             |
| 59.5412 ( <sup>241</sup> Am)  | 1.20 x 10 <sup>-2</sup>                       | 1.49 x 10 <sup>-2</sup> | <b>23.93 %</b> | 1.70 x 10 <sup>-3</sup>                       | 2.02 x 10 <sup>-3</sup> | <b>19.20 %</b> |
| 80.9971 ( <sup>133</sup> Ba)  | 1.18 x 10 <sup>-2</sup>                       | 1.49 x 10 <sup>-2</sup> | <b>26.00 %</b> | 1.73 x 10 <sup>-3</sup>                       | 2.05 x 10 <sup>-3</sup> | <b>18.14 %</b> |
| 121.7817 ( <sup>152</sup> Eu) | 1.12 x 10 <sup>-2</sup>                       | 1.38 x 10 <sup>-2</sup> | <b>22.85 %</b> | 1.65 x 10 <sup>-3</sup>                       | 1.94 x 10 <sup>-3</sup> | <b>17.21 %</b> |
| 344.2785 ( <sup>152</sup> Eu) | 4.00 x 10 <sup>-3</sup>                       | 5.46 x 10 <sup>-3</sup> | <b>36.43 %</b> | 5.99 x 10 <sup>-4</sup>                       | 8.15 x 10 <sup>-4</sup> | <b>36.01 %</b> |
| 356.017 ( <sup>133</sup> Ba)  | 3.85 x 10 <sup>-3</sup>                       | 5.25 x 10 <sup>-3</sup> | <b>36.37 %</b> | 5.81 x 10 <sup>-4</sup>                       | 7.85 x 10 <sup>-4</sup> | <b>35.03 %</b> |
| 778.904 ( <sup>152</sup> Eu)  | 1.59 x 10 <sup>-3</sup>                       | 2.32 x 10 <sup>-3</sup> | <b>45.59 %</b> | 2.45 x 10 <sup>-4</sup>                       | 3.51 x 10 <sup>-4</sup> | <b>43.35 %</b> |
| 964.079 ( <sup>152</sup> Eu)  | 1.26 x 10 <sup>-3</sup>                       | 1.89 x 10 <sup>-3</sup> | <b>50.37 %</b> | 1.87 x 10 <sup>-4</sup>                       | 2.78 x 10 <sup>-4</sup> | <b>48.28 %</b> |
| 1112.074 ( <sup>152</sup> Eu) | 1.10 x 10 <sup>-3</sup>                       | 1.65 x 10 <sup>-3</sup> | <b>49.31 %</b> | 1.62 x 10 <sup>-4</sup>                       | 2.42 x 10 <sup>-4</sup> | <b>49.17 %</b> |
| 1173.501 ( <sup>60</sup> Co)  | 1.03 x 10 <sup>-3</sup>                       | 1.56 x 10 <sup>-3</sup> | <b>51.87 %</b> | 1.45 x 10 <sup>-4</sup>                       | 2.30 x 10 <sup>-4</sup> | <b>58.46 %</b> |
| 1332.501 ( <sup>60</sup> Co)  | 8.97 x 10 <sup>-4</sup>                       | 1.39 x 10 <sup>-3</sup> | <b>54.84 %</b> | 1.24 x 10 <sup>-4</sup>                       | 2.07 x 10 <sup>-4</sup> | <b>66.91 %</b> |
| 1408.006 ( <sup>152</sup> Eu) | 8.59 x 10 <sup>-4</sup>                       | 1.32 x 10 <sup>-3</sup> | <b>53.40 %</b> | 1.18 x 10 <sup>-4</sup>                       | 1.94 x 10 <sup>-4</sup> | <b>64.63 %</b> |

On remarque, dans le tableau précédent, la surestimation systématique à 10 et 30 cm de l'efficacité de détection simulée par MOD01 allant de 20 % à basse énergie (inférieure à 121 keV) à plus de 50 % à haute énergie (supérieure à 1 MeV). Cette étude préliminaire a permis de montrer la nécessité de l'optimisation du modèle MCNP du Falcon 5000.

La surestimation de l'efficacité simulée pourrait être expliquée par la présence au sein du cristal de différentes zones mortes qui ne permettent pas de collecter le signal. Ces zones mortes sont dues à plusieurs phénomènes physiques tels que la présence de lignes de champ au sein du cristal qui ne permet qu'une collection partielle des charges ou encore la présence de dopants déposés aux extrémités du cristal qui empêche la bonne collection des charges.

La suite de ce document va donc exposer la modélisation des zones mortes au sein du cristal permettant la meilleure adéquation possible entre l'efficacité expérimentale et l'efficacité simulée par MCNP.

Afin d'apprécier les zones au sein du cristal pouvant influencer sur l'efficacité de détection, il a été simulé, pour 4 énergies (53, 121, 344 et 1408 keV), le profil en profondeur du flux de gamma dans le détecteur grâce à la fonction MESH TALLY de MCNP. Cette fonction permet de décomposer le détecteur en plusieurs voxels, et pour chacun d'entre eux, MCNP calcul le nombre de particules ayant traversé sa surface.



**Figure 70 : Représentation schématique du flux gamma au sein du détecteur pour des rayonnements  $\gamma$  de différentes énergies en incidence normale dans le cristal Ge**

On remarque que la majorité des  $\gamma$  de 53 keV sont absorbés dans le 1<sup>er</sup> centimètre du cristal ainsi que sur les faces latérales de celui-ci. De plus, plus l'énergie du rayonnement gamma incident augmente plus celui-ci est absorbé en profondeur dans le cristal. On peut donc en conclure que pour diminuer l'efficacité simulée à basse énergie, il faudra implémenter une zone morte latérale au cristal, alors que la diminution de l'efficacité à haute énergie devra être réalisée par une zone morte à l'arrière du cristal.

- Scan du détecteur Falcon

Afin de connaître plus précisément la dimension des zones mortes à implémenter au sein du cristal et permettant une meilleure modélisation du Falcon 5000, il a été décidé de scanner expérimentalement celui-ci grâce à une source ultracollimatée d'<sup>152</sup>Eu.

Le détecteur Falcon 5000 a été scanné grâce à une source d'<sup>152</sup>Eu et une fente de collimation de 1 cm par 1 mm et de 10 cm de longueur. Cette fente est usinée dans une brique de plomb (voir Figure 71). Ce scan a été réalisé sur la face latérale et sur la face frontale du cristal. La scène de mesure est représentée sur la Figure 71, celle-ci représente un scan de la face latérale du cristal de germanium.



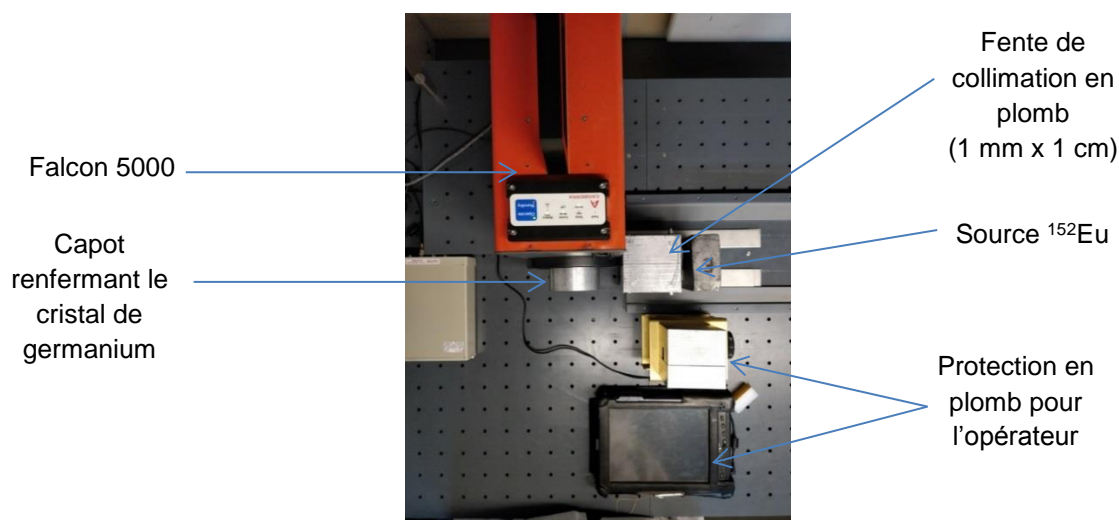


Figure 71 : Scan latéral de cristal de germanium

Le détecteur repose sur un banc de mesure qui se déplace avec un pas de 1 mm. L'acquisition d'un spectre est réalisée grâce à Génie 2000 pour chaque millimètre de déplacement. Chaque spectre obtenu permet de visualiser pour différentes zones scannées du cristal, l'aire nette des différentes raies émises par l' $^{152}\text{Eu}$ .

La source ultracollimatée est d'abord utilisée pour scanner la face avant du détecteur afin d'apprécier le diamètre réel du cristal de germanium. La Figure 72 représente le taux de comptage pour certaines raies de l' $^{152}\text{Eu}$ , à différentes abscisses de mesure, normalisé au taux de comptage maximal présent au centre du cristal. La normalisation ainsi réalisée, permet d'observer la dimension de la zone morte latérale du cristal.

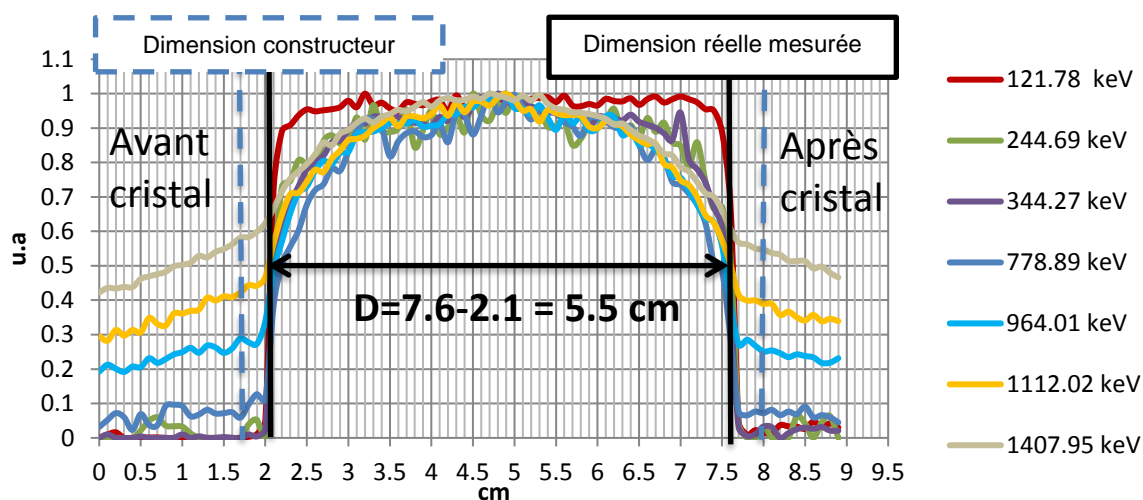


Figure 72 : Scan frontal du détecteur Falcon 5000.

Plusieurs indications peuvent être tirées de la Figure 72 :

- le diamètre actif du cristal est plus petit que prévu : 5.5 cm au lieu de 6 cm. Cette valeur correspond à la largeur à mi-hauteur des résultats de la raie de plus basse énergie (121.78 keV) représentant au mieux la face avant du cristal.
- le profil s'arrondit à haute énergie : ce profil est dû aux diffusions Compton des rayonnements gamma sur les bords du cristal. En effet, plus l'énergie du rayonnement  $\gamma$  incident augmente, plus celui-ci est soumis aux diffusions Compton et non à un effet photoélectrique,

- le taux de comptage n'est pas nul à l'extérieur du cristal : ceci est dû à la géométrie du collimateur. En effet, la surface de la fente de collimation ne semble pas optimisée et le volume du collimateur semble trop faible pour arrêter tous les rayonnements  $\gamma$ .

Dans un deuxième temps, la source ultracollimatée est utilisée pour scanner la face latérale du détecteur afin d'apprécier la zone morte arrière du cristal de germanium. La Figure 73 représente le taux de comptage pour certaines raies de l' $^{152}\text{Eu}$ , à différentes abscisses de mesure, normalisé au taux de comptage maximal présent au centre du cristal.

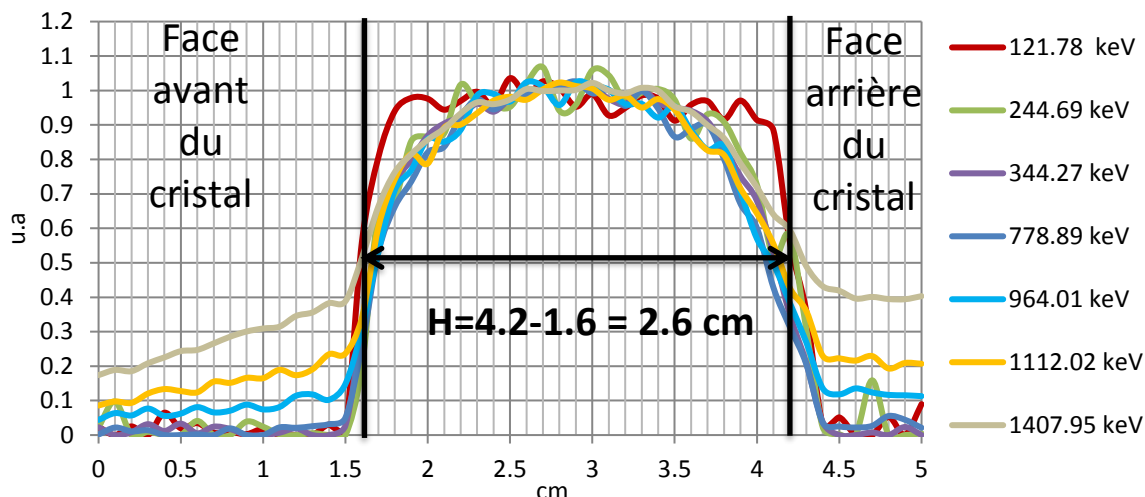


Figure 73 : Scan latéral du détecteur Falcon 5000.

Plusieurs indications peuvent être tirées du scan latéral du détecteur :

- la profondeur active du cristal est plus petite que prévue : 2.6 cm au lieu de 3 cm. Cette valeur correspond à la largeur à mi-hauteur des résultats de la raie de plus basse énergie (121.78 keV) représentant au mieux la face latérale du cristal.
- le profil arrondi et asymétrique à haute énergie. Il apparaît que le nombre d'impulsions reste constant pour des raies de hautes énergies en face arrière du cristal alors qu'il chute plus brutalement en face avant. Ce profil peut être expliqué par la présence en face avant et arrière du cristal de matériaux plus ou moins absorbent de gamma et non simulés dans la Figure 74.
- le taux de comptage n'est pas nul à l'extérieur du cristal.

**Remarque :** Il semblerait que le cristal de germanium soit situé à 1.5 cm du capot et non à 1.2 cm d'après les données constructeur. Cependant, il a été décidé de laisser le cristal à 1.2 cm du capot car la modélisation de l'efficacité à 10 cm reflète correctement l'efficacité expérimentale.

- Modélisation des zones mortes (MOD02)

Les scans frontaux et latéraux ont permis de mettre en évidence les dimensions réelles des zones mortes présentes dans le cristal de germanium. Une nouvelle modélisation du détecteur Falcon 5000, implémentant ces zones mortes a été mise en œuvre et est notée MOD02 (Figure 74).



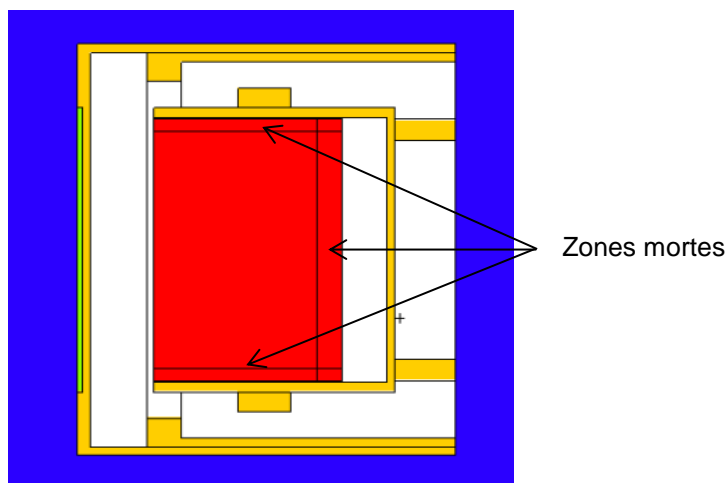


Figure 74 : Modélisation MCNP des zones mortes (MOD02)

De la même manière que précédemment, les efficacités de détection simulées à 10 et 30 cm avec MOD02 ont été comparées avec les valeurs expérimentales et sont récapitulées dans le tableau suivant.

Tableau 15 : Comparaison des efficacités de détection expérimentales et modélisées (MOD02)

| Energie d'émission (keV)      | Efficacité de détection expérimentale à 10 cm |                         |                     | Efficacité de détection expérimentale à 30 cm |                         |                     |
|-------------------------------|---|-------------------------|---------------------|---|-------------------------|---------------------|
|                               | Expérimentale                                 | MOD02                   | Différence relative | Expérimentale                                 | MOD02                   | Différence relative |
| 59.5412 ( <sup>241</sup> Am)  | 1.20 x 10 <sup>-2</sup>                       | 1.23 x 10 <sup>-2</sup> | <b>1.79 %</b>       | 1.70 x 10 <sup>-3</sup>                       | 1.66 x 10 <sup>-3</sup> | <b>-2.48 %</b>      |
| 80.9971 ( <sup>133</sup> Ba)  | 1.18 x 10 <sup>-2</sup>                       | 1.22 x 10 <sup>-2</sup> | <b>3.40 %</b>       | 1.73 x 10 <sup>-3</sup>                       | 1.67 x 10 <sup>-3</sup> | <b>-3.60 %</b>      |
| 121.7817 ( <sup>152</sup> Eu) | 1.12 x 10 <sup>-2</sup>                       | 1.12 x 10 <sup>-2</sup> | <b>-0.28 %</b>      | 1.65 x 10 <sup>-3</sup>                       | 1.56 x 10 <sup>-3</sup> | <b>-5.66 %</b>      |
| 344.2785 ( <sup>152</sup> Eu) | 4.00 x 10 <sup>-3</sup>                       | 3.96 x 10 <sup>-3</sup> | <b>-1.12 %</b>      | 5.99 x 10 <sup>-4</sup>                       | 5.83 x 10 <sup>-4</sup> | <b>-2.68 %</b>      |
| 356.017 ( <sup>133</sup> Ba)  | 3.85 x 10 <sup>-3</sup>                       | 3.80 x 10 <sup>-3</sup> | <b>-1.38 %</b>      | 5.81 x 10 <sup>-4</sup>                       | 5.60 x 10 <sup>-4</sup> | <b>-3.63 %</b>      |
| 778.904 ( <sup>152</sup> Eu)  | 1.59 x 10 <sup>-3</sup>                       | 1.57 x 10 <sup>-3</sup> | <b>-1.31 %</b>      | 2.45 x 10 <sup>-4</sup>                       | 2.34 x 10 <sup>-4</sup> | <b>-4.35 %</b>      |
| 964.079 ( <sup>152</sup> Eu)  | 1.26 x 10 <sup>-3</sup>                       | 1.26 x 10 <sup>-3</sup> | <b>0.02 %</b>       | 1.87 x 10 <sup>-4</sup>                       | 1.84 x 10 <sup>-4</sup> | <b>-2.13 %</b>      |
| 1112.074 ( <sup>152</sup> Eu) | 1.10 x 10 <sup>-3</sup>                       | 1.08 x 10 <sup>-3</sup> | <b>-1.82 %</b>      | 1.62 x 10 <sup>-4</sup>                       | 1.57 x 10 <sup>-4</sup> | <b>-3.51 %</b>      |
| 1173.501 ( <sup>60</sup> Co)  | 1.03 x 10 <sup>-3</sup>                       | 1.02 x 10 <sup>-3</sup> | <b>-0.82 %</b>      | 1.45 x 10 <sup>-4</sup>                       | 1.51 x 10 <sup>-4</sup> | <b>3.72 %</b>       |
| 1332.501 ( <sup>60</sup> Co)  | 8.97 x 10 <sup>-4</sup>                       | 9.02 x 10 <sup>-4</sup> | <b>0.57 %</b>       | 1.24 x 10 <sup>-4</sup>                       | 1.36 x 10 <sup>-4</sup> | <b>9.50 %</b>       |
| 1408.006 ( <sup>152</sup> Eu) | 8.59 x 10 <sup>-4</sup>                       | 8.57 x 10 <sup>-4</sup> | <b>-0.22 %</b>      | 1.18 x 10 <sup>-4</sup>                       | 1.27 x 10 <sup>-4</sup> | <b>7.65 %</b>       |

L'implémentation de la zone morte latérale et de la zone morte arrière du cristal permet une meilleure modélisation de l'efficacité à 10 cm et 30 cm, voir Tableau 14 et Tableau 15.

**Remarque :** Le modèle MOD02, se base sur les dimensions fournies par le constructeur du cristal de germanium (MIRION Technologies/CANBERRA) mais avec des zones mortes de 2.5 mm sur les côtés et 4 mm à l'arrière. Ce modèle, physiquement peu réaliste en termes d'épaisseur des zones mortes, a cependant été préféré à la modélisation d'un cristal moins volumineux ayant des zones mortes plus réalistes (i.e. plus petites), dans l'attente d'informations plus précises du fabricant ou de pouvoir réaliser une radiographie et une tomographie X du cristal. En pratique, les zones mortes modélisées se situant à l'arrière du cristal par rapport à la surface d'entrée des photons à mesurer, elle équivalent de fait à un modèle de cristal plus petit.

### II.6.2.2 Description des échantillons et de la géométrie de mesure

Le Laboratoire de Mesures Nucléaires a eu à disposition 38 échantillons de minerai d'uranium finement broyé afin de valider définitivement les méthodes développées pendant la thèse. Les échantillons ont une teneur en uranium comprise entre 100 et 100 000 ppm<sub>u</sub> mesurée par ICP-MS et validée en spectrométrie gamma haute résolution par ORANO. Une étude comparant des mesures effectuées avec la raie à

1001 keV ou l'ICP-MS, pour des concentrations inférieures à 5000 ppmu montrent que les deux approches donnent des résultats similaires [53]. De plus, une étude menée lors de la thèse avec un analyseur à fluorescence X a permis de valider ces différentes teneurs (voir annexe 0). Les différentes teneurs sont données à 10 % près par ORANO Mining.

Le tableau suivant récapitule pour chaque échantillon, sa teneur, sa hauteur de remplissage, sa masse et sa densité.

**Tableau 16 : Récapitulatif des échantillons à disposition au Laboratoire de Mesures Nucléaires**

| Numéro | Id           | Teneur (ppmu)<br>ICP-MS | U/eRa | hauteur (cm) | Masse (g) | Densité |
|--------|--------------|-------------------------|-------|--------------|-----------|---------|
| 21     | 201000489002 | 100                     | 1     | 5.3          | 253       | 1.20    |
| 38     | 201000489029 | 203                     | 1     | 4.2          | 188       | 1.17    |
| 14     | 201000643033 | 299                     | 0.51  | 4.5          | 203       | 1.17    |
| 11     | 201007287032 | 405                     | 0.58  | 7.1          | 400       | 1.32    |
| 29     | 201000489036 | 406                     | 1     | 6.2          | 329       | 1.28    |
| 8      | 201007771048 | 500                     | 0.37  | 6.8          | 379       | 1.32    |
| 33     | 200910967049 | 501                     | 1     | 5.7          | 187       | 0.81    |
| 36     | 201000489047 | 605                     | 0.99  | 3.5          | 174       | 1.34    |
| 35     | 201000489056 | 700                     | 1.01  | 4.7          | 220       | 1.20    |
| 19     | 201107422016 | 709                     | 3.29  | 3.2          | 177       | 1.51    |
| 13     | 201007827017 | 800                     | 0.58  | 8.1          | 406       | 1.13    |
| 24     | 201000643047 | 801                     | 1.01  | 4.4          | 199       | 1.18    |
| 25     | 201107290012 | 801                     | 0.99  | 3.2          | 131       | 1.12    |
| 3      | 201006434031 | 899                     | 1     | 8.5          | 419       | 1.10    |
| 23     | 201007829017 | 2000                    | 0.46  | 8.9          | 380       | 0.94    |
| 4      | 201000488036 | 3007                    | 0.99  | 4.2          | 260       | 1.62    |
| 1      | 200909654092 | 3984                    | 1.01  | 5.8          | 378       | 1.60    |
| 22     | 201004864085 | 4024                    | 0.82  | 2            | 100       | 1.44    |
| 7      | 201104828023 | 5895                    | 1.03  | 7.5          | 250       | 0.77    |
| 15     | 201007830030 | 6024                    | 0.63  | 6.4          | 300       | 1.13    |
| 26     | 201007809009 | 6916                    | 2.34  | 5.5          | 253       | 1.14    |
| 2      | 200909654055 | 7038                    | 1     | 4.6          | 246       | 1.38    |
| 20     | 201007827011 | 7134                    | 0.76  | 6.4          | 300       | 1.13    |
| 30     | 200910023025 | 8332                    | 0.67  | 4.5          | 184       | 1.06    |
| 5      | 201306018364 | 8832                    | ?     | 1.2          | 40        | 1.00    |
| 28     | 201007827010 | 9187                    | 0.69  | 8            | 386       | 1.09    |
| 6      | 200909654052 | 10136                   | 1     | 3.7          | 209       | 1.51    |
| 37     | 201104715047 | 10525                   | 0.79  | 5.5          | 300       | 1.36    |
| 27     | 201007856018 | 11076                   | 2.43  | 2.1          | 89        | 1.22    |
| 34     | 201007809015 | 15066                   | 0.83  | 5.5          | 260       | 1.18    |
| 31     | 200910088067 | 22416                   | 0.83  | 5.7          | 300       | 1.30    |
| 32     | 200910088056 | 30083                   | 0.81  | 4.2          | 216       | 1.35    |
| 9      | 200910088066 | 31696                   | 0.93  | 5.2          | 276       | 1.34    |
| 17     | 200910088059 | 38112                   | 0.93  | 4.5          | 254       | 1.46    |
| 18     | 200910088058 | 68512                   | 0.98  | 4.3          | 225       | 1.37    |
| 12     | 200910088062 | 77713                   | 0.9   | 5.5          | 295       | 1.33    |
| 10     | 200910088065 | 90747                   | 0.91  | 4.9          | 243       | 1.26    |
| 16     | 200910088057 | 98457                   | 0.89  | 4.5          | 240       | 1.38    |

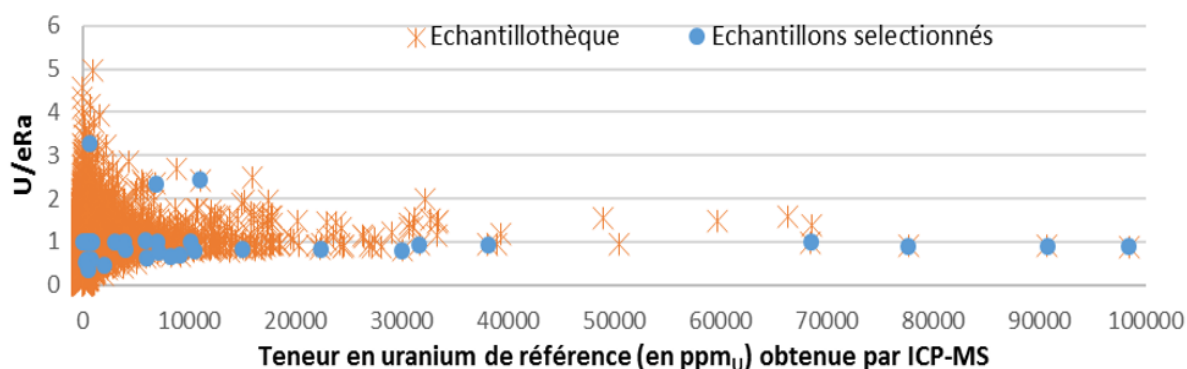
Ces échantillons ont été choisis parmi plus de 20 000 échantillons disponibles dans l'échantillonnage d'ORANO Mining située à Bessines (voir Figure 75). Le choix des échantillons vise à couvrir la gamme des teneurs comprises entre 100 et 100 000 ppmu. Pour chaque teneur, différents déséquilibres U/eRa ont été sélectionnés.

**Remarque :** eRa signifie « équivalent radium ». Cette valeur d'activité radium a été mesurée au préalable par ORANO Mining en plaçant l'échantillon dans une résine afin de s'assurer que le radium est en équilibre avec le  $^{214}\text{Bi}$  et  $^{214}\text{Pb}$  (le phénomène d'évaporation radon étant minimisé par la résine). La mesure du déséquilibre U/eRa peut ainsi être réalisée grâce aux raies du  $^{234}\text{Th}$  (pour l'uranium) et les raies du  $^{214}\text{Bi}$  et  $^{214}\text{Pb}$  (pour le radium), et équivaut donc au déséquilibre U/Rn.

Les différentes teneurs en thorium n'ont pas été mesurées par ORANO Mining pour les 38 échantillons. En effet, on considère une très faible activité gamma provenant de la chaîne du thorium pour les échantillons étudiés. Par exemple, pour l'échantillon n°35 de 700 ppm<sub>U</sub> qui correspond à une activité en  $^{238}\text{U}$  de 1900 Bq, on mesure une activité en thorium de 14 Bq avec la raie à 2.615 MeV du  $^{208}\text{Tl}$ . Cette activité correspond à une teneur en thorium de 15 ppm<sub>Th</sub>. On considérera par la suite que l'activité gamma due à la chaîne du thorium est négligeable par rapport à celles de  $^{238}\text{U}$  et  $^{235}\text{U}$  pour les échantillons étudiés. Cette information simplifiera la méthode proposée au chapitre III sur la mesure par bandes d'énergie en spectrométrie gamma basse résolution.

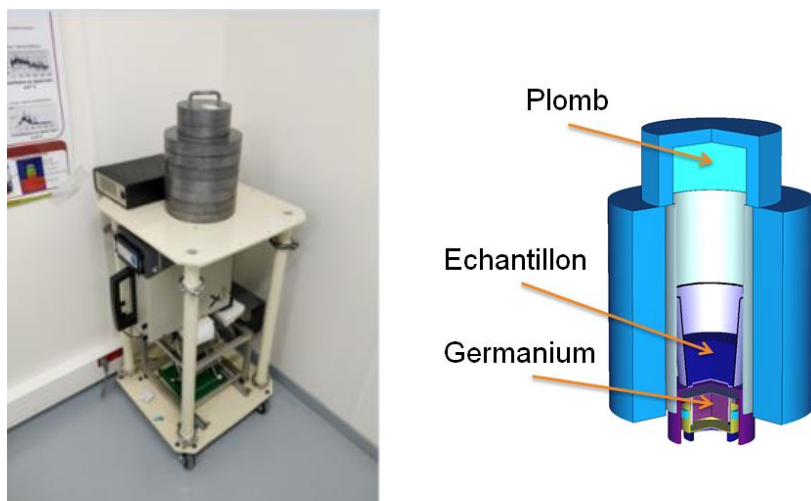
Les échantillons ayant une masse insuffisante (< 50 g) n'ont pas été sélectionnés pour l'étude. De plus, des échantillons disposant d'un déséquilibre U/eRa < 1 ont été choisis car ils constituent des cas difficiles pour la méthode, le signal du groupe uranium dans ce type d'échantillon étant « noyé » dans le signal du groupe Rn. Les échantillons ayant un déséquilibre U/eRa > 1 ont à l'inverse une teneur en uranium plus facilement caractérisable car le signal de celui-ci devient plus significatif.

**Remarque :** Sans la méthode d'analyse par bandes d'énergie, un simple comptage total conduit à surestimer la teneur en uranium si U/eRa < 1 et inversement à la sous-estimer si U/eRa > 1.



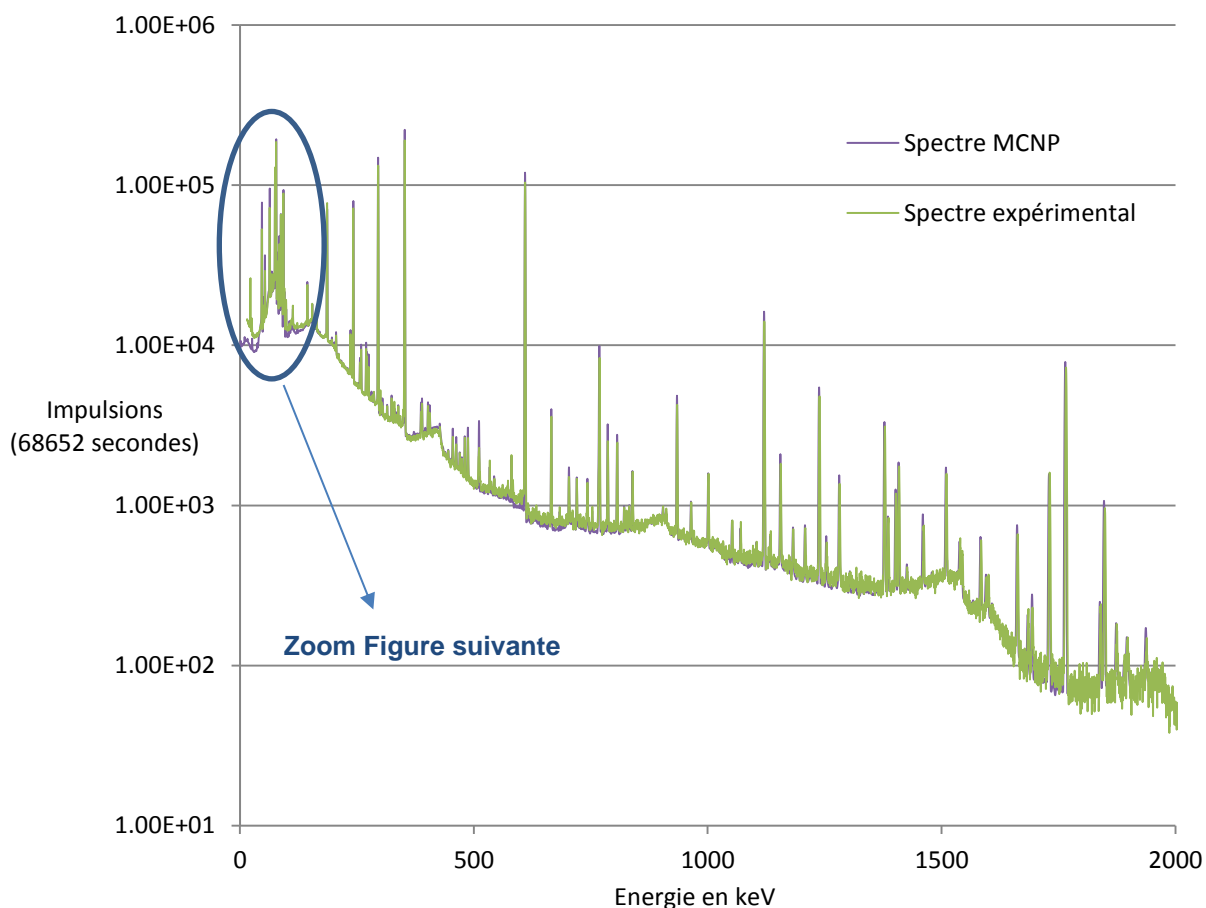
**Figure 75 : Echantillothèque de Bessines et échantillons sélectionnés pour l'étude**

La nouvelle géométrie de mesure des expériences réalisées au LMN a été implémentée dans les simulations par rapport à la première étude expérimentale d'ORANO Mining (voir § II.6.1). Les échantillons concassés possèdent en moyenne une densité de **1.3** qui est retenue comme densité de l'échantillon « type » dans les simulations. La hauteur de remplissage de l'échantillon est de **50 mm** pour un pot en PVC de dimension standard (hauteur 10 cm). La teneur en uranium de l'échantillon « type » est de **1 000 ppm<sub>U</sub>** et sa minéralogie est du **SiO<sub>2</sub>**. Il est entouré d'un collimateur en plomb de 4.5 cm d'épaisseur pour atténuer le bruit de fond provenant de la pièce. L'échantillon est entouré de cuivre afin d'absorber les raies X de fluorescence du plomb (72.80 keV, 74.97 keV, 84.45 keV et 87.30 keV). Le détecteur utilisé est un modèle Falcon 5000, le même que celui simulé auparavant (zones mortes comprises).

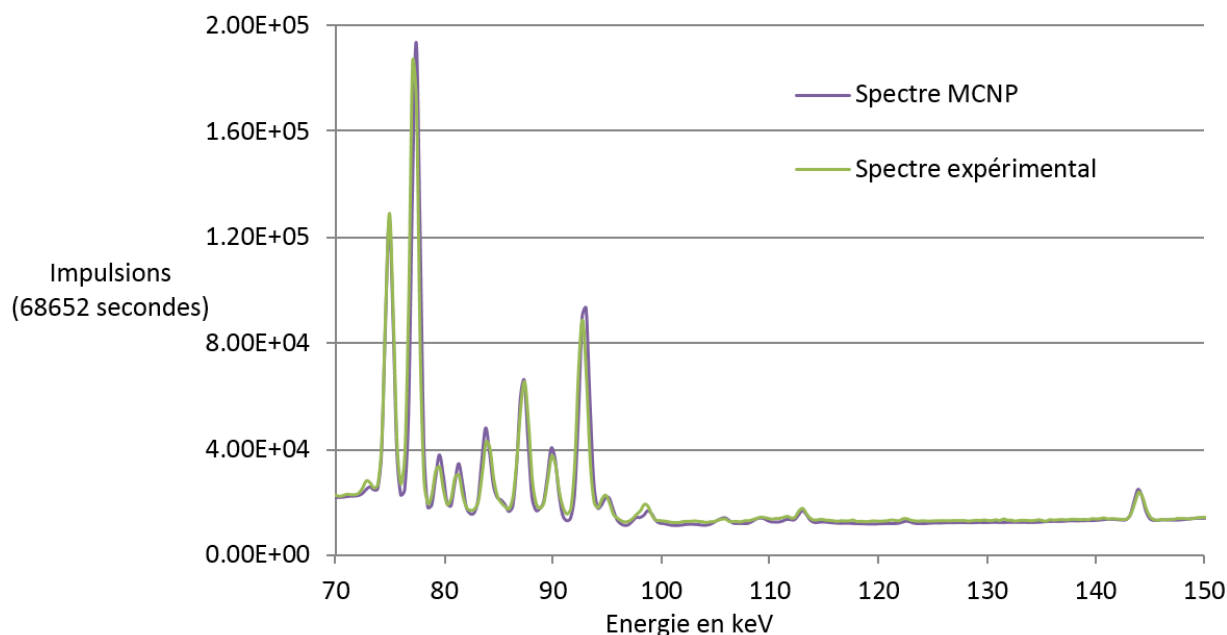


**Figure 76 : Nouvelle géométrie de mesure**

Afin de vérifier la modélisation de la géométrie de mesure (voir Figure 76), il a été décidé de mesurer un échantillon de minerai d'uranium (n°35, 700 ppm<sub>U</sub>) et de comparer le spectre expérimental obtenu au spectre simulé (voir Figure 77 et Figure 78).



**Figure 77 : Comparaison du spectre expérimental et simulé pour l'échantillon n°35 de 700 ppm<sub>U</sub>**



**Figure 78 : Comparaison du spectre expérimental et simulé pour l'échantillon n°35 de 700 ppmU entre 70 keV et 150 keV**

Lorsque l'on calcule les différentes activités massiques du  $^{214}\text{Pb}$  et du  $^{214}\text{Bi}$  via leurs raies principales à 242 keV, 295 keV, 352 keV, 609 keV et 1120 keV, on trouve une activité massique moyenne de  $7.53 \text{ Bq.g}^{-1}$  avec un écart type de  $0.16 \text{ Bq.g}^{-1}$  soit 2.08 % de la valeur moyenne. La même mesure a été réalisée sur la totalité des 38 échantillons et l'écart type moyen maximal obtenu sur le calcul de l'activité massique en  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$  est de 3.99 %, ce qui valide la simulation de la scène de mesure des échantillons.

Afin de mesurer la teneur en uranium des différents échantillons avec les raies à 92 keV, 98 keV et 1001 keV, plusieurs simulations ont été menées pour calculer les nouvelles efficacités de détection et rendements de fluorescence aux différentes densités et hauteurs de remplissage. La nouvelle géométrie étant quasi identique à la géométrie de référence de la méthode, les variations des rendements de fluorescence et efficacités de détection suivant la densité, la hauteur de remplissage ou encore la teneur en uranium sont similaires.

Cependant, compte tenu de la gamme des teneurs en uranium étudiée (0 à 100 000 ppm<sub>U</sub>), il est indispensable de tenir compte de ce paramètre dans les calculs d'efficacités de détection et rendements de fluorescence, contrairement à la mesure des 75 échantillons d'ORANO Mining sur une gamme plus réduite (0 à environ 14 000 ppm<sub>U</sub>) où seules la densité et la hauteur de minerai des échantillons ont été prises en compte, voir § II.6.1.1. La correction des efficacités de détection et des différents rendements de fluorescence en fonction de la densité, de la hauteur de remplissage et de la teneur en uranium est exposée en annexe A.3.

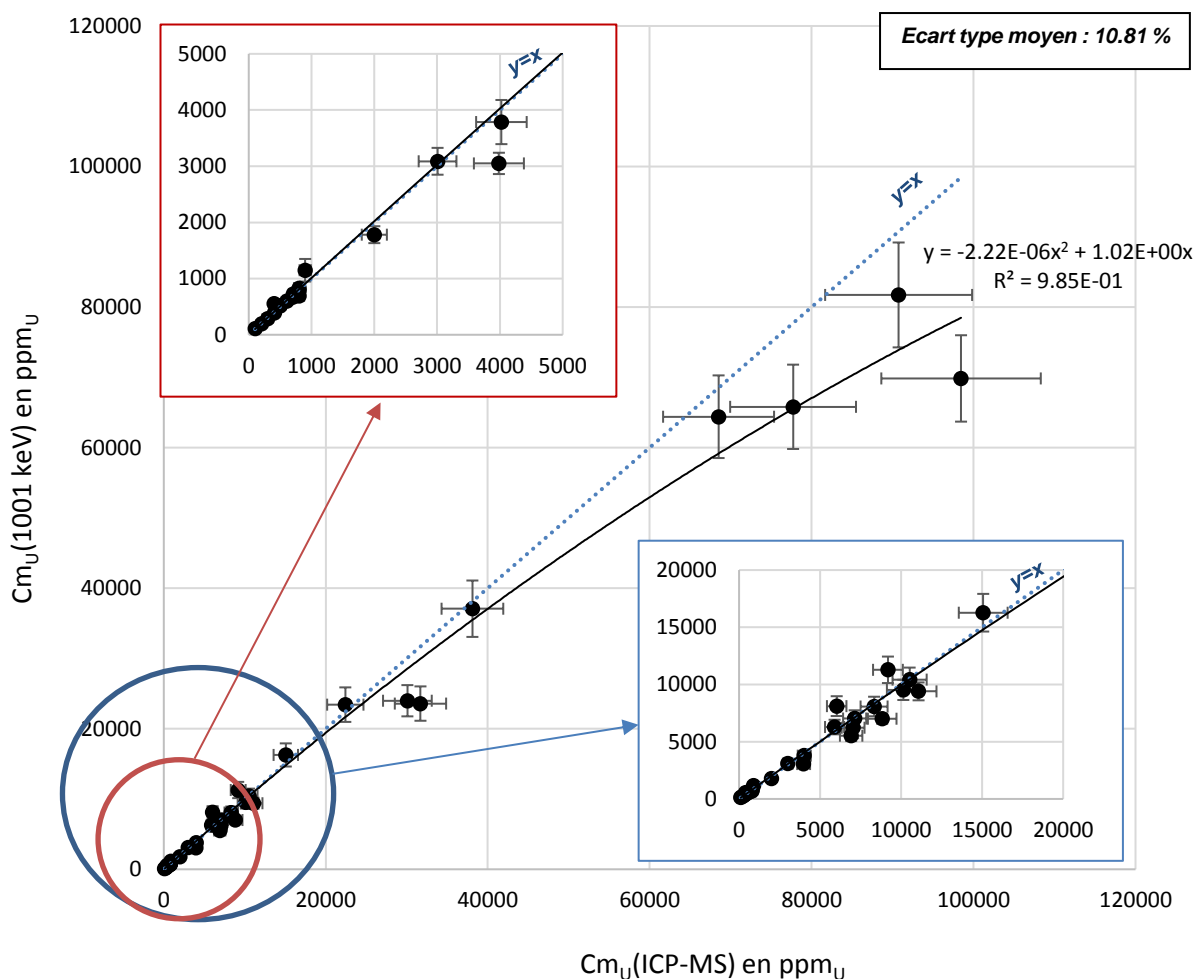
### II.6.2.3 Paramètres d'acquisition et de traitement du signal

Dans un premier temps, les différentes valeurs des paramètres d'acquisition et de traitement numérique du signal sont identiques à celles utilisées lors des mesures réalisées par ORANO Mining (§ II.6.1.2), c'est-à-dire la *Configuration n°1* :

- LTC mode = OFF
- LT Trim = 500
- Rise Time = 5.6  $\mu\text{s}$
- Flat Top = 0.8  $\mu\text{s}$

### II.6.2.4 Mesure de la teneur en uranium et gain en temps d'acquisition

Le graphique suivant représente pour chaque échantillon la teneur en uranium mesurée avec la raie à 1001 keV par rapport à la mesure ICP-MS sur des prélèvements, considérée ici comme la référence. Le temps de mesure sur chaque échantillon est assez long pour obtenir en moyenne 1000 coups dans chaque aire nette à 1001 keV. Les différentes incertitudes ont été calculées pour chaque échantillon en suivant la méthodologie décrite dans le § II.7. L'incertitude liée à la teneur de référence obtenue par ICP-MS est annoncée à 10 % par ORANO Mining.



**Figure 79 : Concentration massique  $Cm_U(1001 \text{ keV})$  en fonction de la concentration massique  $Cm_U$  de référence (ICP-MS)**

L'écart relatif absolu moyen avec la teneur de référence est de l'ordre de 11 % et les deux mesures semblent donc cohérentes aux incertitudes près. On remarque cependant une sous-estimation systématique de la teneur en uranium  $Cm_U(1001 \text{ keV})$  par rapport à la teneur de référence à forte teneur, supérieure à 60 000 ppm<sub>U</sub>. Plusieurs causes potentielles ont été envisagées comme un effet d'auto-absorption (mais celle-ci a été estimée par simulation à 1001 keV et 100 000 ppm<sub>U</sub> comme étant négligeable) ou la présence d'un temps mort important et mal corrigé par le système d'acquisition du détecteur FALCON (voir § II.6.2.5). Cette seconde hypothèse est d'autant plus plausible qu'à basse teneur (faible temps mort) l'accord avec l'ICP-MS est très bon.

Les deux graphiques suivants représentent les teneurs mesurées avec les raies à 92 keV et 98 keV.

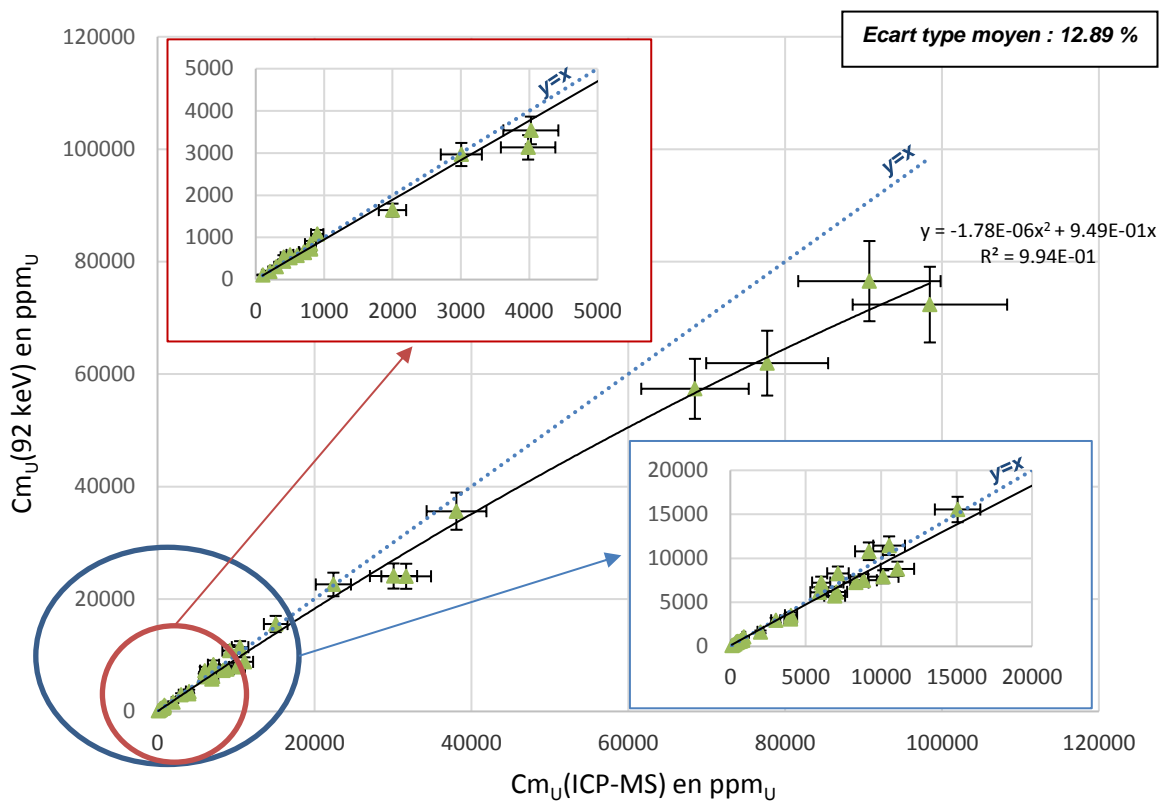


Figure 80 : Concentration massique  $Cm_U(92\text{ keV})$  en fonction de la concentration massique de référence (ICP-MS)

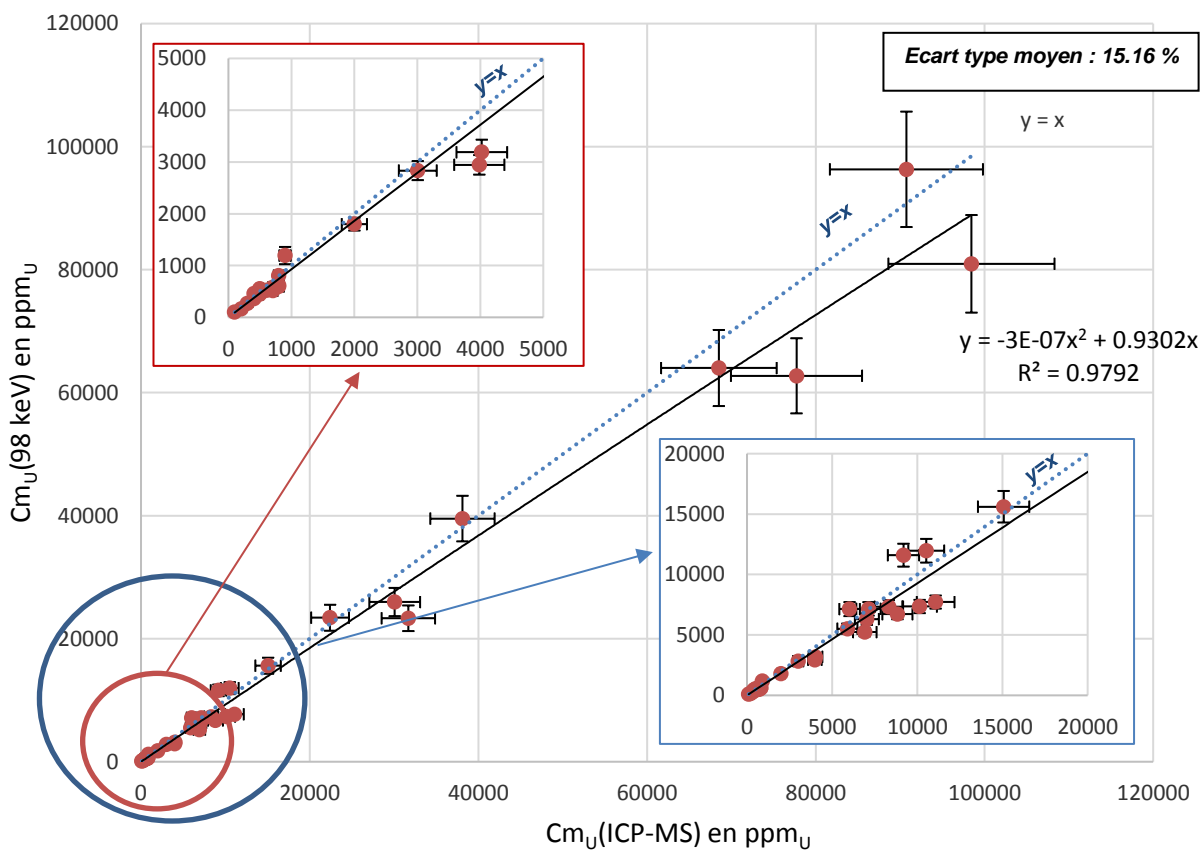


Figure 81 : Concentration massique  $Cm_U(98\text{ keV})$  en fonction de la concentration massique de référence (ICP-MS)

**Remarque :** Il est à noter qu'un nouveau facteur F, permettant de corriger le fait que seulement 6 raies les plus intenses du spectre gamma sont prises en compte comme terme source de fluorescence, a été implémenté dans le calcul de la teneur  $C_{mU}(98 \text{ keV})$ . Ce facteur correctif passe de **0.78** lors des mesures ORANO Mining à **0.90** dans le cas des mesures au LMN avec la nouvelle géométrie. Cette modification du facteur F provient du changement de géométrie de l'échantillon. Le diamètre de la géométrie n°1 (ORANO Mining) vaut 11 cm alors que la géométrie n°2 (LMN) ne vaut que 7 cm. A masse de minerai égale, il faut donc une hauteur plus grande pour contenir le même volume de minerai. Le tableau suivant montre l'impact de ce changement de géométrie sur la proportion apportée par chacune de 6 raies gamma à la fluorescence totale.

**Tableau 17 : Pourcentage de fluorescence induite par chaque raie sélectionnée dans la fluorescence totale. Cas des deux géométries de mesures.**

| Energie de la raie de fluorescence | Echantillon type (ORANO Mining)<br>Hauteur = 6 cm<br>Diamètre = 11 cm | Echantillon type (LMN)<br>Hauteur = 5 cm<br>Diamètre = 7 cm |
|------------------------------------|---|---|
| 185 keV                            | 8.37 %  | 14.38 %   |
| 242 keV                            | 7.86 %  | 10.49 %   |
| 295 keV                            | 15.87 %   | 20.14 %   |
| 352 keV                            | 25.28 %   | 29.28 %   |
| 609 keV                            | 15.35 %   | 15.31 %   |
| 1120 keV                           | 3.05 %  | 2.61 %  |
| <b>Total (Facteur F)</b>           | <b>76 %</b>   | <b>92 %</b>   |

L'écart type moyen observé entre ces deux teneurs et la teneur de référence mesurée par ICP-MS est de l'ordre de 13 % pour  $C_{mU}(92 \text{ keV})$  et 15 % pour  $C_{mU}(98 \text{ keV})$ . Notons qu'à haute teneur (supérieure à 20 000 ppm<sub>U</sub>), la teneur en uranium mesurée avec la raie à 92 keV sous-estime à nouveau la teneur de référence mesurée par ICP-MS, comme avec la raie à 1001 keV. Cette sous-estimation est moindre, cependant, pour  $C_{mU}(98 \text{ keV})$  qui semble mieux refléter la teneur de référence mesurée par ICP-MS à forte teneur.

L'hypothèse la plus probable afin d'expliquer la sous-estimation à fortes teneurs des indicateurs  $C_{mU}(92 \text{ keV})$  et  $C_{mU}(1001 \text{ keV})$  est une mauvaise correction du temps mort par le système d'acquisition à fort taux de comptage. Le cas de la teneur en uranium  $C_{mU}(98 \text{ keV})$  est particulier car celle-ci est calculée grâce au ratio de l'aire nette de la raie à 98 keV et des aires nettes des différentes raies représentant le terme source de fluorescence (185 keV, 242 keV, 295 keV, 352 keV, 609 keV et 1120 keV). Il est donc vraisemblable que celle-ci soit moins impactée par les pertes de comptage si celles-ci sont du même ordre pour toutes les raies du spectre, c'est-à-dire s'il existe un biais similaire au numérateur et au dénominateur (voir équation (Eq. 2.3) au § II.4.3).

La partie suivante (§ II.6.2.5) vise à vérifier cette hypothèse via une étude expérimentale menée avec la « méthode des 2 sources » permettant de quantifier la perte de comptage en fonction du taux de comptage total ou du temps mort. De plus, cette partie aura pour objectif d'optimiser les valeurs des paramètres d'acquisition afin de mieux corriger les pertes de comptages.

- Gain en temps d'acquisition

La géométrie de mesure implémentée au LMN diffère peu de la première géométrie des mesures réalisées par ORANO Mining. Les gains en temps de comptage observés sur une plage de teneurs en uranium équivalentes, de 0 à 10 000 ppm<sub>U</sub>, sont donc identiques à ceux décrits au § II.6.1.4, c'est-à-dire que les temps de comptage peuvent être diminués d'un facteur moyen d'environ 65 dans les cas d'échantillons homogènes avec l'utilisation de la raie à 92 keV et d'un facteur environ 2 (croissant avec la teneur en uranium) avec la raie à 98 keV. Néanmoins, notons que la plage de teneurs en uranium étudiée au LMN



est plus importante (0 à 100 000 ppmu) que celle étudié par ORANO Mining (0 à 14 000 ppmu). Dès lors, un gain en temps d'acquisition plus important peut être observé avec  $Cm_{U}(98 \text{ keV})$ , allant jusqu'à un facteur 70 à 100 000 ppmu, (voir Annexe A.5).

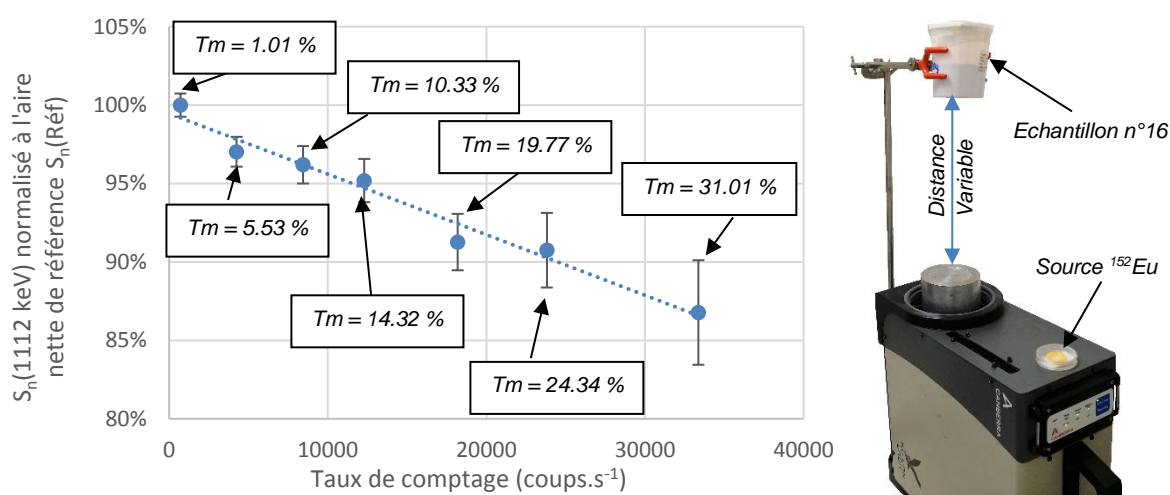
### II.6.2.5 Temps mort du détecteur Falcon 5000

- Estimation des pertes de comptage

Afin de vérifier la correction du temps mort effectuée par le détecteur Falcon 5000 à haut taux de comptage, il a été décidé de quantifier les pertes de comptage en utilisant la méthode des « 2 sources » [54] :

- une source de référence d' $^{152}\text{Eu}$  est placée à une position fixe près du détecteur Falcon 5000, qui émet un rayonnement gamma à 1112 keV ne coïncidant avec aucune autre émission de la deuxième source utilisée (échantillon de minerai d'uranium). L'aire nette à 1112 keV sur le spectre de référence vaut  $S_n(1112 \text{ keV}) = 6.67 \text{ coups.s}^{-1}$  pour un taux de comptage total de 710 coups.s<sup>-1</sup> et un temps mort de 1.01 %.
- une source perturbatrice constituée par l'échantillon de minerai de plus forte teneur (n°16, dont la mesure ICP-MS donne 98 457 ppmu) est ensuite approchée au fur et à mesure du détecteur afin d'augmenter le taux de comptage total et le temps mort. A chaque étape, on mesure l'aire nette à 1112 keV due à la source de référence. Au contact du détecteur, l'échantillon perturbateur induit un taux de comptage de 33000 coups.s<sup>-1</sup> et un temps mort de 31 %.

La figure suivante représente les pertes de comptage dans l'aire nette à 1112 keV en fonction du taux de comptage total à disposition sur les spectres. Les différentes valeurs sont normalisées à la valeur de référence précédemment citée de 6.67 coups.s<sup>-1</sup>. Chaque mesure est réalisée pendant un temps actif de 3600 secondes, c'est-à-dire le temps corrigé du temps mort. Les paramètres d'acquisition sont ceux d'origine utilisés lors des mesures des 38 échantillons (*Configuration n°1*).



**Figure 82 : Pertes de comptage dans l'aire nette à 1112 keV en fonction du taux de comptage total. La valeur du temps mort associé à chaque mesure est encadrée.**

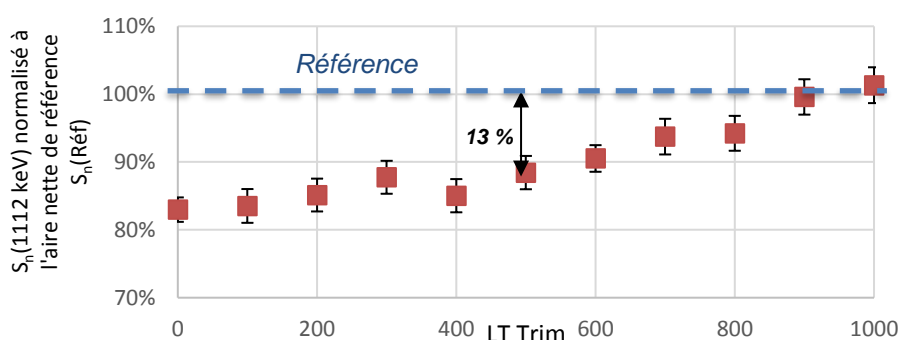
On remarque une perte d'environ 13 % de comptage dans l'aire nette à 1112 keV pour des taux de comptage de 33 000 coups.s<sup>-1</sup> et un temps mort de 31 %. Il semble donc que les paramètres d'acquisition utilisés lors des mesures d'échantillon de minerai d'uranium ne soient pas optimisés. Cette sous-estimation observée expérimentalement permet de valider l'hypothèse que le détecteur ne corrige pas suffisamment les pertes de comptage pour les échantillons de hautes teneurs. La partie suivante a pour objectif de définir de nouvelles valeurs des paramètres d'acquisition permettant une meilleure correction de temps mort.

Remarque : Deux mesures reposant sur la méthode à 2 sources ont été réalisées avec une source multiple composée de  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{133}\text{Ba}$  comme source de référence, et une source d' $^{152}\text{Eu}$  comme source parasite. Dans ce cas, une perte de comptage de 3 % est observé sur le raie à 81 keV ( $^{133}\text{Ba}$ ), 2 % sur la raie à 661 keV ( $^{137}\text{Cs}$ ) et 0 % sur les raies à 1173 keV et 1332 keV a été observé entre un temps mort de 1.5 % (source de référence seule) et un temps mort de 31 % (source de référence + perturbatrice). Il est donc nécessaire, pour optimiser les paramètres d'acquisition, de choisir une source parasite présentant un spectre gamma proche de celui des échantillons étudiés.

- Optimisation des paramètres d'acquisition

Afin de corriger au mieux le temps mort, le LTC (*Live Time Corrector*) est par la suite activé. Ce mode permet de corriger des effets d'empilement et d'activer le système de correction du temps actif, tout en générant cependant du temps mort supplémentaire. Les valeurs des composantes de mise en forme du signal, c'est-à-dire le *Rise Time* (temps de montée et de descente identiques) et le *Flat Top* (temps de plateau) ne sont pas modifiées afin de ne pas dégrader la résolution du détecteur.

Enfin, le coefficient LT Trim permet de régler le temps mort manuellement afin d'ajuster la correction des pertes de comptage, en le faisant varier afin de retrouver l'aire nette de référence à 1112 keV. Dans ce cas, on se place dans la configuration où l'échantillon parasite est situé au plus près du détecteur afin d'obtenir le temps mort maximum de 31 % et on fait varier la valeur du LT Trim de 0 à 1000 par pas de 100. La Figure suivante représente, pour les 11 valeurs testées du paramètre LT Trim, la valeur de l'aire nette à 1112 keV normalisée à la valeur de référence.



**Figure 83 : Aire nette à 1112 keV normalisée à l'aire nette de référence  $S_n(\text{Réf})$  en fonction du LT Trim**

La valeur initiale du LT Trim fixée à 500 conduit à sous-estimer l'aire nette de la raie à 1112 keV de 13 % comme nous l'avons observé sur la figure précédente. La valeur du LT Trim permettant de retrouver le signal de référence est égale à 900 lorsque les paramètres d'acquisitions sont ceux énoncés plus haut (*Configuration n°2*), c'est-à-dire :

- LTC mode = ON (PUR Guard = 1.1)
  - LT Trim = 900
  - Rise Time = 5.6  $\mu\text{s}$
  - Flat Top = 0.8  $\mu\text{s}$
- } *Configuration n°2*

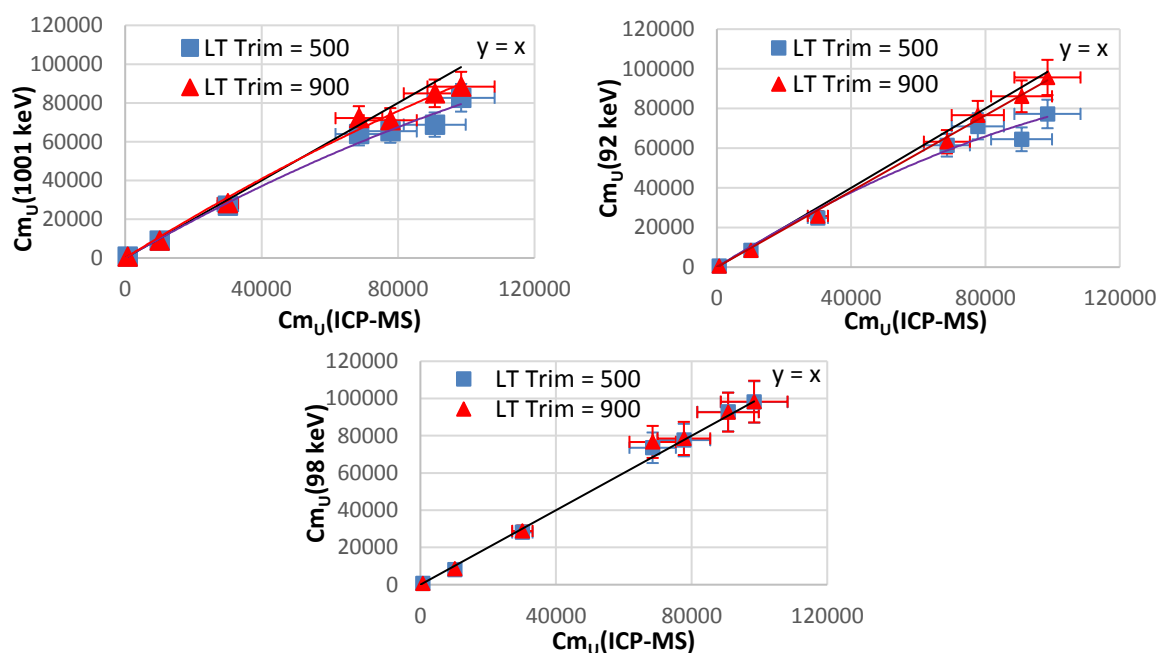
- Validation des nouveaux paramètres d'acquisition

Afin de vérifier que les nouvelles valeurs des paramètres d'acquisition trouvées précédemment permettent une meilleure correction du temps mort et ainsi une meilleure estimation des hautes teneurs en uranium, il a été décidé de mesurer à nouveau 8 des 38 échantillons en balayant la plage des teneurs en uranium étudiées, avec un LT Trim de 500 (réglage d'origine) puis le LT Trim optimisé de 900, les autres paramètres

étant ceux de la *Configuration n° 2* ci-dessus. Les incertitudes sont calculées grâce à la méthodologie développée dans la partie suivante (§ II.7).

**Tableau 18 : Teneurs en uranium  $Cm_U(1001\text{ keV})$ ,  $Cm_U(92\text{ keV})$  et  $Cm_U(98\text{ keV})$  calculées pour 8 échantillons avec  $LT\ Trim = 500$  et  $LT\ Trim = 900$**

| $Cm_U(\text{ICP-MS})$ en ppmu | $Cm_U(1001\text{ keV})$ en ppmu |                   | $Cm_U(92\text{ keV})$ en ppmu |                   | $Cm_U(98\text{ keV})$ en ppmu |                    |
|-------------------------------|---------------------------------|-------------------|-------------------------------|-------------------|-------------------------------|--------------------|
|                               | LT Trim 500                     | LT Trim 900       | LT Trim 500                   | LT Trim 900       | LT Trim 500                   | LT Trim 900        |
| 700<br>(± 70)                 | 659<br>(± 54)                   | 636<br>(± 57)     | 636<br>(± 59)                 | 640<br>(± 59)     | 605<br>(± 53)                 | 611<br>(± 61)      |
| 2000<br>(± 200)               | 1787<br>(± 142)                 | 1752<br>(± 138)   | 1647<br>(± 152)               | 1685<br>(± 156)   | 1831<br>(± 132)               | 1816<br>(± 131)    |
| 10136<br>(± 1014)             | 8983<br>(± 829)                 | 8977<br>(± 769)   | 8445<br>(± 783)               | 8493<br>(± 787)   | 8085<br>(± 662)               | 8512<br>(± 690)    |
| 30083<br>(± 3008)             | 26870<br>(± 2474)               | 28289<br>(± 2523) | 24862<br>(± 2307)             | 25859<br>(± 2398) | 28065<br>(± 2867)             | 28858<br>(± 2969)  |
| 68512<br>(± 6851)             | 63920<br>(± 5845)               | 72135<br>(± 6170) | 61477<br>(± 5721)             | 63233<br>(± 5886) | 73543<br>(± 8204)             | 76680<br>(± 8603)  |
| 77713<br>(± 7771)             | 65339<br>(± 5908)               | 71042<br>(± 6279) | 71045<br>(± 6609)             | 76691<br>(± 7135) | 77676<br>(± 8734)             | 78551<br>(± 8895)  |
| 90747<br>(± 9075)             | 68796<br>(± 6275)               | 84933<br>(± 7123) | 64480<br>(± 6000)             | 86146<br>(± 8006) | 92777<br>(± 10394)            | 92668<br>(± 10462) |
| 98457<br>(± 9846)             | 82627<br>(± 7130)               | 88445<br>(± 7586) | 77238<br>(± 7182)             | 95655<br>(± 8882) | 98110<br>(± 11126)            | 98339<br>(± 11214) |



**Figure 84 : Teneurs en uranium  $Cm_U(1001\text{ keV})$ ,  $Cm_U(92\text{ keV})$  et  $Cm_U(98\text{ keV})$  calculées en fonction de la teneur ICP-MS pour 7 échantillons avec  $LT\ Trim = 500$  et  $LT\ Trim = 900$**

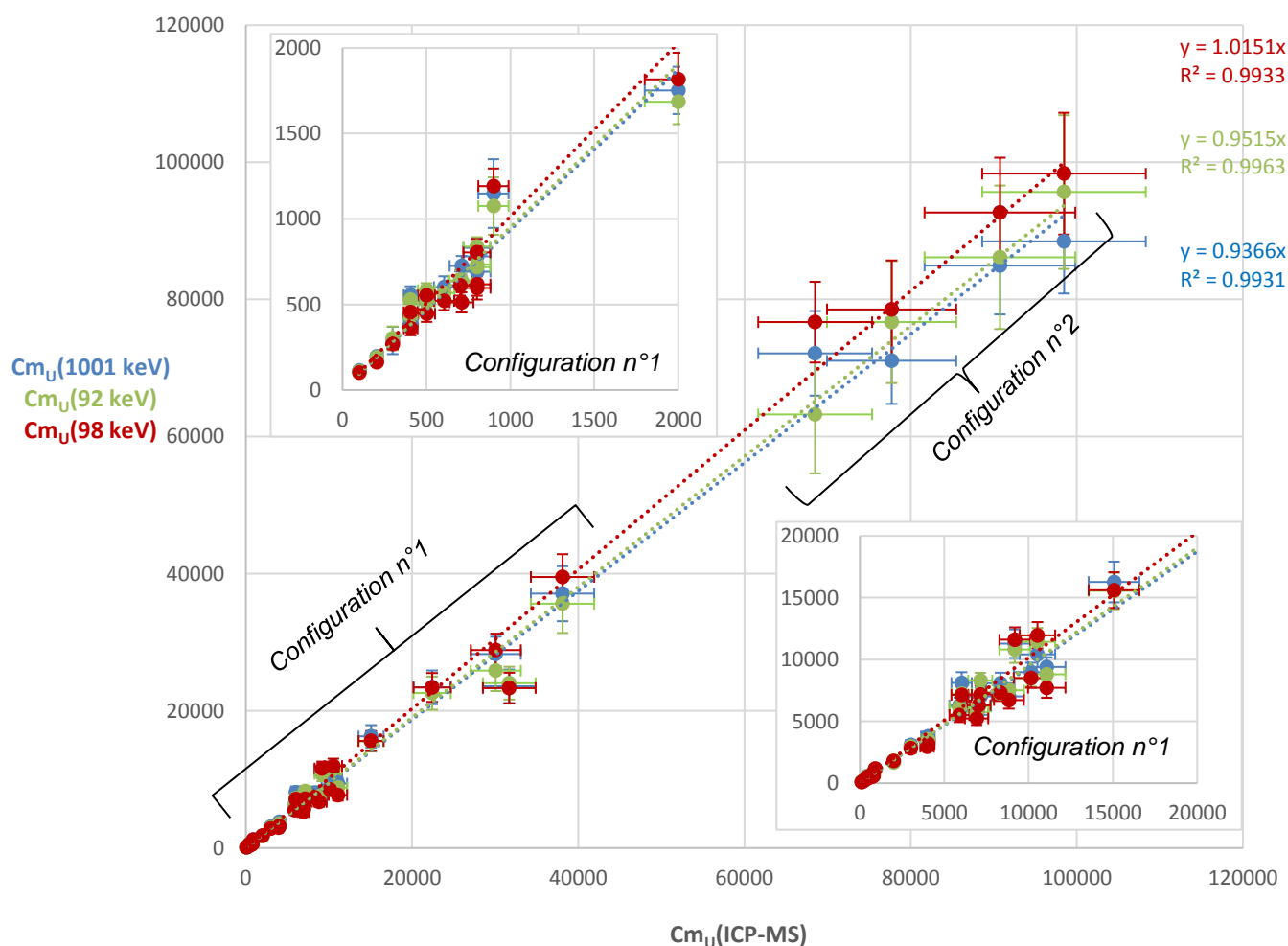
Le tableau et la figure précédente confirment que les nouvelles valeurs des paramètres d'acquisition permettent une meilleure estimation de la teneur en uranium. En effet :

- à faible teneur, inférieure à 40 000 ppmu, aucune modification n'est observée sur les teneurs calculées, aux incertitudes de mesure près, entre une mesure avec LT Trim de 500 et LT Trim de 900. Ceci est expliqué par le fait que les temps morts enregistrés sont relativement faibles et que la *Configuration n°1* initialement proposée suffit pour mesurer les différentes teneurs,
- à forte teneur, supérieure à 40 000 ppmu, la *Configuration n°2* permet une meilleure estimation de  $Cm_U(1001\text{ keV})$  et  $Cm_U(92\text{ keV})$ . On note que la teneur  $Cm_U(98\text{ keV})$  est bien estimée quelle que

soit la valeur du LT Trim car celle-ci repose sur un ratio d'aires nettes, ce qui la rend plus stable vis-à-vis des biais dans la correction des pertes de comptage.

A la lumière des résultats précédents, on peut considérer que les mesures réalisées avec la *Configuration n°1* sont correctes pour des teneurs situées entre 0 et 40 000 ppm<sub>U</sub> et qu'il est nécessaire d'utiliser la *Configuration n°2* pour les échantillons de plus fortes teneurs. Pour de futures applications, la *Configuration n°2* serait évidemment préférable car elle permet une bonne correction des pertes de comptage dues au temps mort de l'électronique pour une plus large gamme de teneurs. Pour notre étude, cependant, il n'est pas nécessaire de remesurer la totalité des 38 échantillons avec la *Configuration n°2* car seuls les 4 échantillons de plus fortes teneurs sont impactés, comme le montre clairement la Figure 84.

La figure suivante représente finalement les teneurs en uranium mesurées pour la totalité des 38 échantillons avec la *Configuration n°1* pour des teneurs inférieures à 40 000 ppm<sub>U</sub> et avec la *Configuration n°2* au-delà. Les incertitudes sont calculées grâce à la méthodologie développée dans la partie suivante. L'incertitude de la mesure ICP-MS est fixée à 10 % conformément aux indications fournies par ORANO Mining.



**Figure 85 : Teneurs  $Cm_U(1001 \text{ keV})$ ,  $Cm_U(92 \text{ keV})$  et  $Cm_U(98 \text{ keV})$  en fonction de la teneur en uranium de référence  $Cm_U(\text{ICP-MS})$  avec les deux configurations des paramètres d'acquisition.**

## II.7 Incertitude totale sur la mesure

Cette partie a pour objectif d'estimer l'incertitude sur la teneur en uranium mesurée avec les raies à 92 keV, 98 keV et 1001 keV lors de l'étude expérimentale menée par ORANO Mining (§ II.6.1) et par le Laboratoire de Mesures Nucléaires (§ II.6.2).

Afin de simplifier la démarche, notons que les trois formules permettant le calcul de la teneur en uranium via les différentes raies (92, 98 et 1001 keV) explicitée dans les § II.2, § II.3, § II.4 peuvent s'écrire sous la forme :

$$Cm_U(E) = \frac{S_n(E)}{Tc \times M_{ech} \times CE}$$

Avec :

- $E = [92 \text{ keV}, 98 \text{ keV}, 1001 \text{ keV}]$
- $S_n(E)$  : aire nette totale de la raie étudiée (coups.s<sup>-1</sup>)
- $Tc$  : temps de comptage (s) actif, *ie.* corrigé du temps mort de la chaîne d'acquisition
- $M_{ech}$  : Masse de l'échantillon (g)
- $CE$  : Coefficient d'étalonnage  $CE_{1001}$  (§ II.2.2),  $CE_{92}$  (§ II.3.3.5) ou  $CE_{98}$  (§ II.4.4.4)

Dès lors, l'incertitude générale peut s'écrire sous la forme :

$$\frac{\sigma_{Cm_U}}{Cm_U} = \sqrt{\left(\frac{\sigma_{Tc}}{Tc}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{Mech}}{M_{ech}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{Sn(E)}}{Sn(E)}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{CE}}{CE}\right)^2}$$

On considérera par la suite que l'incertitude relative  $\frac{\sigma_{Tc}}{Tc}$  est négligeable au vu des autres causes d'incertitudes ainsi que celle liée à la masse de l'échantillon  $\frac{\sigma_{Mech}}{M_{ech}}$  (mesure avec balance de précision). Notons que l'incertitude sur  $Tc$  intègre celle sur la correction du temps mort, dont la précision a été vérifiée au paragraphe précédent.

L'incertitude sur l'aire nette de la raie étudiée  $\frac{\sigma_{Sn(E)}}{Sn(E)}$  fourni par Génie 2000 [55] est composée de l'incertitude due à l'ajustement gaussien réalisé sur chaque raie ainsi que de l'incertitude statistique de comptage.

Il reste donc à estimer, pour chaque raie étudiée, l'incertitude sur les coefficients d'étalonnage  $CE_{1001}$ ,  $CE_{92}$  et  $CE_{98}$ .

Il est important de souligner que les incertitudes estimées ici ne tiennent pas compte du risque d'hétérogénéité des échantillons. Par contre, comme nous l'avons vu, la comparaison des teneurs estimées à partir des raies à 92 keV et 98 keV permet de détecter une hétérogénéité et de recommander un concassage et une homogénéisation plus fins de l'échantillon.

## II.7.1 Incertitude sur la teneur $Cm_U(1001 \text{ keV})$

Afin de déterminer l'incertitude sur la teneur  $Cm_U(1001 \text{ keV})$ , il est nécessaire d'étudier l'incertitude sur le coefficient d'étalonnage  $CE_{1001}$ . On rappelle que le coefficient d'étalonnage à 1001 keV (voir § II.2.2) s'écrit :

$$CE_{1001} = \frac{Eff_{1001keV} \times I_{1001keV}({}^{234m}_{91}Pa) \times Na \times \ln(2)}{1.0072 \times 10^6 \times M({}^{238}_{92}U) \times T_{\frac{1}{2}}({}^{238}_{92}U)}$$

Les incertitudes liées au nombre d'Avogadro, au temps de demi-vie, à la masse molaire de  ${}^{238}U$ , ainsi qu'à la proportion d' ${}^{235}U$  dans l'uranium naturel (qui conduit au facteur 1.0072) sont considérées comme négligeables au vu des autres sources d'incertitudes. On note par la suite le facteur

$$K = \frac{Na \times \ln(2)}{1.0072 \times 10^6 \times M({}^{238}_{92}U) \times T_{\frac{1}{2}}({}^{238}_{92}U)}$$

qui regroupe ces paramètres d'incertitude relative négligeable vis-à-vis des

autres sources d'incertitudes.

Dès lors,

$$CE_{1001} = K \times Eff_{1001keV} \times I_{1001keV}({}^{234m}_{91}Pa)$$

Ainsi par propagation des incertitudes,

$$\left(\frac{\sigma_{CE_{1001}}}{CE_{1001}}\right)^2 = \left(\frac{\sigma_{Eff_{1001\ keV}}}{Eff_{1001\ keV}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{I_{1001\ keV}(^{234m}_{91}Pa)}}{I_{1001\ keV}(^{234m}_{91}Pa)}\right)^2$$

On trouve dès lors,

$$\frac{\sigma_{Cm_U(1001\ keV)}}{Cm_U(1001\ keV)} = \sqrt{\left(\frac{\sigma_{Sn(E)}}{Sn(E)}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{Eff_{1001\ keV}}}{Eff_{1001\ keV}}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{I_{1001\ keV}(^{234m}_{91}Pa)}}{I_{1001\ keV}(^{234m}_{91}Pa)}\right)^2}$$

Le tableau suivant récapitule pour chaque incertitude relative, les valeurs utilisées lors de la campagne de mesure réalisée par ORANO Mining et celle réalisée par le Laboratoire de Mesures Nucléaires (LMN). Une incertitude relative moyenne sur l'ensemble des échantillons est calculée à la fin de ce tableau.

**Tableau 19 : Incertitudes relatives associées à Cm<sub>U</sub>(1001 keV)**

| Incertitudes   | ORANO  | LMN  | Commentaires   |
|--|--|--|--|
| $\frac{\sigma_{Sn(1001\ keV)}}{Sn(1001\ keV)}$                                 | Min : 0.5 %<br>Max : 87 %<br>Moyenne : 7.5 % | Min : 1.4 %<br>Max : 26 %<br>Moyenne : 6.9 % | Incertitude due à la statistique et à l'ajustement gaussien. Une forte incertitude est observée pour les échantillons de très faible teneur (< 50ppmu)                   |
| $\frac{\sigma_{Eff_{1001\ keV}}}{Eff_{1001\ keV}}$                             | 5 % (ISOCS)                                  | 3 % (MCNP)                                   | Incertitude due à la minéralogie, à la modélisation du détecteur Falcon ainsi qu'à la statistique des simulations MCNP   |
| $\frac{\sigma_{I_{1001\ keV}(^{234m}_{91}Pa)}}{I_{1001\ keV}(^{234m}_{91}Pa)}$ | 0.94 %                                       |  | Bibliothèque LARA  |
| $\left(\frac{\sigma_{Cm_U(1001\ keV)}}{Cm_U(1001\ keV)}\right)_{moyenne}$      | 10.3 %                                       | 9.9 %  | L'incertitude moyenne totale est dominée par l'incertitude sur l'aire nette à 1001 keV (due à la très faible intensité d'émission du <sup>234m</sup> Pa à cette énergie) |

## II.7.2 Incertitude sur la teneur Cm<sub>U</sub>(92 keV)

Afin de déterminer l'incertitude sur la teneur Cm<sub>U</sub>(92 keV), il est nécessaire d'étudier l'incertitude sur le coefficient d'étalonnage CE<sub>92</sub>. On rappelle que le coefficient d'étalonnage à 92 keV (voir § II.3.3.5) s'écrit :

$$CE_{92} = CE_{^{234}_{90}Th} + CE_{^{235}_{92}U}$$

Avec,

$$CE_{^{234}_{90}Th} = \frac{Eff_{92\ keV} \times I_{92\ keV}(^{234}_{90}Th) \times \ln(2) \times Na}{1.0072 \times 10^6 \times M(^{238}_{92}U) \times T_{\frac{1}{2}}(^{238}_{92}U)} \text{ et } CE_{^{235}_{92}U} = \frac{\frac{A(^{235}_{92}U)}{A(^{238}_{92}U)} \times Eff_{93\ keV} \times I_{93\ keV}(^{235}_{92}U) \times \ln(2) \times Na}{1.0072 \times 10^6 \times M(^{238}_{92}U) \times T_{\frac{1}{2}}(^{238}_{92}U)}$$

On considèrera par la suite l'égalité des efficacités de détection  $Eff_{93\ keV}$  et  $Eff_{92\ keV}$ . En effet, les nombreuses simulations ont montré une différence inférieure à 1 % entre ces deux grandeurs.

En combinant l'expression du coefficient d'étalonnage CE<sub>92</sub> avec le facteur K défini auparavant, on obtient :

$$CE_{92} = K \times Eff_{92\ keV} \times \left[ I_{92\ keV}(^{234}_{90}Th) + \frac{A(^{235}_{92}U)}{A(^{238}_{92}U)} \times I_{93\ keV}(^{235}_{92}U) \right]$$

Ainsi, par propagation des incertitudes et en négligeant celle sur le ratio  $\frac{A(^{235}_{92}U)}{A(^{238}_{92}U)}$  :

$$\left(\frac{\sigma_{CE_{92}}}{CE_{92}}\right)^2 = \left(\frac{\sigma_{Eff_{92\text{ keV}}}}{Eff_{92\text{ keV}}}\right)^2 + \frac{\left(\sigma_{I_{92\text{ keV}}(^{234}\text{Th})} + \left(\frac{A(^{235}\text{U})}{A(^{238}\text{U})} \times \sigma_{I_{93\text{ keV}}(^{235}\text{U})}\right)\right)^2}{\left[I_{92\text{ keV}}(^{234}\text{Th}) + \frac{A(^{235}\text{U})}{A(^{238}\text{U})} \times I_{93\text{ keV}}(^{235}\text{U})\right]^2}$$

Ainsi,

$$\frac{\sigma_{Cm_U(92\text{ keV})}}{Cm_U(92\text{ keV})} = \sqrt{\left(\frac{\sigma_{Sn(E)}}{Sn(E)}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{Eff_{92\text{ keV}}}}{Eff_{92\text{ keV}}}\right)^2 + \frac{\left(\sigma_{I_{92\text{ keV}}(^{234}\text{Th})} + \left(\frac{A(^{235}\text{U})}{A(^{238}\text{U})} \times \sigma_{I_{93\text{ keV}}(^{235}\text{U})}\right)\right)^2}{\left[I_{92\text{ keV}}(^{234}\text{Th}) + \frac{A(^{235}\text{U})}{A(^{238}\text{U})} \times I_{93\text{ keV}}(^{235}\text{U})\right]^2}}$$

Le tableau suivant récapitule pour chaque incertitude relative, les valeurs utilisées lors de la campagne de mesure réalisée par ORANO Mining et celle réalisée par le Laboratoire de Mesures Nucléaires (LMN). Une incertitude moyenne pour tous les échantillons est calculée à la fin de ce tableau. On note qu'une diminution de l'incertitude sur l'intensité d'émission gamma du <sup>234</sup>Th permettrait d'obtenir une incertitude totale plus faible. La raie à 92 keV permet donc d'obtenir des teneurs beaucoup plus rapidement que la raie à 1001 keV avec une incertitude du même ordre (environ 10 %).

**Tableau 20 : Incertitudes relatives associées à Cm<sub>U</sub>(92 keV)**

| Incertitudes   | ORANO  | LMN  | Commentaires  |
|--|--|--|---|
| $\frac{\sigma_{Sn(92\text{ keV})}}{Sn(92\text{ keV})}$                                   | Min : 0.08 %<br>Max : 6.72 %<br>Moyenne : 0.96 % | Min : 0.12 %<br>Max : 2.07 %<br>Moyenne : 0.82 % | Incertitude due à la statistique et à l'ajustement gaussien   |
| $\frac{\sigma_{Eff_{92\text{ keV}}}}{Eff_{92\text{ keV}}}$                               | 10 %<br>(ISOCS)                                  | 7 %<br>(MCNP)                                    | Incertitude due à la minéralogie, la modélisation du détecteur Falcon ainsi que la statistique des simulations MCNP.<br>De plus, cette incertitude prend en considération le fait que les effets induits par l'auto-atténuation de l'uranium ne sont pas corrigés par le logiciel ISOCS dans le cas des mesures réalisées par ORANO Mining. |
| $\frac{\sigma_{I_{92\text{ keV}}(^{234}\text{Th})}}{I_{92\text{ keV}}(^{234}\text{Th})}$ | 6.21 %   |  | Bibliothèque LARA – La contribution du signal de l' <sup>235</sup> U étant faible dans la raie à 92 keV (voir Figure 41), l'incertitude globale sur l'intensité est dominée par celle induite sur le <sup>234</sup> Th (6.21 %)   |
| $\frac{\sigma_{I_{93\text{ keV}}(^{235}\text{U})}}{I_{93\text{ keV}}(^{235}\text{U})}$   | 1.91 %   |  |   |
| $\left(\frac{\sigma_{Cm_U(92\text{ keV})}}{Cm_U(92\text{ keV})}\right)_{moyenne}$        | 11.69 %  | 9.29 %   | L'incertitude totale est dominée par celles sur l'efficacité de détection et sur l'intensité des émissions gamma du <sup>234</sup> Th.  |

### II.7.3 Incertitude sur la teneur Cm<sub>U</sub>(98 keV)

Afin de déterminer l'incertitude sur la teneur Cm<sub>U</sub>(98 keV), il est nécessaire d'étudier l'incertitude sur le coefficient d'étalonnage CE<sub>98</sub>. On rappelle que le coefficient d'étalonnage à 98 keV (voir § II.4.4.4) s'écrit :

$$CE_{98} = CE_{^{234}\text{mPa}} + CE_{^{223}\text{Ra}} + CE_{^{226}\text{Ra}} + \frac{\sum_{E_\gamma} [\eta_{Fluo}(E_\gamma, d, h) \times S_{nette}(E_\gamma)]}{T_C \times F}$$

Dans l'expression CE<sub>98</sub> il apparait une composante passive et une composante liée à la fluorescence X de l'uranium. Dès lors, on peut décomposer ce coefficient d'étalonnage en un coefficient d'étalonnage passif, noté CE<sub>passif</sub> et un coefficient lié à la fluorescence CE<sub>Fluo</sub> :

$$CE_{98} = CE_{Fluo} + CE_{passif}$$

Ainsi, par propagation des incertitudes :

$$\left(\frac{\sigma_{CE_{98}}}{CE_{98}}\right)^2 = \frac{\sigma_{CE_{Fluo}}^2 + \sigma_{CE_{passif}}^2}{(CE_{Fluo} + CE_{passif})^2}$$

avec

$$CE_{Fluo} = \frac{\sum_{E_\gamma} [\eta_{fluo}(E_\gamma, d, h) \times S_{nette}(E_\gamma)]}{Tc \times F}$$

d'où

$$\sigma_{CE_{Fluo}}^2 = \frac{\sum_{E_\gamma} \left[ \left( \eta_{fluo}(E_\gamma, d, h) \times \sigma_{S_{nette}(E_\gamma)} \right)^2 + \left( S_{nette}(E_\gamma) \times \sigma_{\eta_{fluo}(E_\gamma, d, h)} \right)^2 \right] \times F^2 + \left( \sum_{E_\gamma} \left[ \eta_{fluo}(E_\gamma, d, h) \times S_{nette}(E_\gamma) \right] \right)^2 \times \sigma_F^2}{Tc^2 \times F^4}$$

et

$$CE_{passif} = CE_{234m_{91}Pa} + CE_{223_{88}Ra} + CE_{226_{88}Ra}$$

où

$$\begin{aligned} - CE_{234m_{91}Pa} &= \frac{Eff_{98keV} \times I_{98keV}({}^{234m}_{91}Pa) \times \ln(2) \times Na}{1.0072 \times 10^6 \times M({}^{238}_{92}U) \times T_{1/2}({}^{238}_{92}U)} \\ - CE_{223_{88}Ra} &= \frac{\frac{A({}^{223}_{88}Ra)}{A({}^{238}_{92}U)} \times Eff_{98keV} \times \ln(2) \times Na \times I_{98keV}({}^{223}_{88}Ra)}{1.0072 \times 10^6 \times M({}^{238}_{92}U) \times T_{1/2}({}^{238}_{92}U)} \\ - CE_{226_{88}Ra} &= \frac{\frac{A({}^{226}_{88}Ra)}{A({}^{238}_{92}U)} \times Eff_{98keV} \times I_{98keV}({}^{226}_{88}Ra) \times \ln(2) \times Na}{1.0072 \times 10^6 \times M({}^{238}_{92}U) \times T_{1/2}({}^{238}_{92}U)} \end{aligned}$$

En combinant l'expression du coefficient d'étalonnage  $CE_{passif}$  avec le facteur K défini auparavant, on obtient :

$$CE_{passif} = K \times Eff_{98keV} \times \left[ I_{98keV}({}^{234m}_{91}Pa) + \frac{A({}^{226}_{88}Ra)}{A({}^{238}_{92}U)} \times I_{98keV}({}^{226}_{88}Ra) + \frac{A({}^{223}_{88}U)}{A({}^{238}_{92}U)} \times I_{98keV}({}^{223}_{88}Ra) \right]$$

Dès lors, en négligeant les incertitudes sur  $\frac{A({}^{226}_{88}Ra)}{A({}^{238}_{92}U)}$  et  $\frac{A({}^{223}_{88}U)}{A({}^{238}_{92}U)}$  :

$$\sigma_{CE_{passif}}^2 = K^2 \times \left[ I_{98keV}({}^{234m}_{91}Pa) + \frac{A({}^{226}_{88}Ra)}{A({}^{238}_{92}U)} \times I_{98keV}({}^{226}_{88}Ra) + \frac{A({}^{223}_{88}U)}{A({}^{238}_{92}U)} \times I_{98keV}({}^{223}_{88}Ra) \right]^2 \times \sigma_{Eff_{98keV}}^2 + (K \times Eff_{98keV})^2 \times \left[ \sigma_{I_{98keV}({}^{234m}_{91}Pa)}^2 + \left( \frac{A({}^{226}_{88}Ra)}{A({}^{238}_{92}U)} \times \sigma_{I_{98keV}({}^{226}_{88}Ra)} \right)^2 + \left( \frac{A({}^{223}_{88}U)}{A({}^{238}_{92}U)} \times \sigma_{I_{98keV}({}^{223}_{88}Ra)} \right)^2 \right]$$

Ainsi, on peut déduire l'incertitude globale sur  $Cm_U(98 \text{ keV})$  :

$$\frac{\sigma_{Cm_U(98 \text{ keV})}}{Cm_U(98 \text{ keV})} = \sqrt{\frac{\textcircled{1} (\sigma_{Sn(E)})^2}{Sn(E)^2} + \frac{\textcircled{2} \sigma_{CE_{passif}}^2 + \textcircled{3} \sigma_{CE_{Fluo}}^2}{(CE_{passif} + CE_{Fluo})^2}}$$

Le tableau suivant récapitule pour chaque incertitude relative, les valeurs utilisées lors de la campagne de mesures réalisée par ORANO Mining et celle réalisée par le Laboratoire de Mesures Nucléaires (LMN). Une incertitude moyenne sur l'ensemble des échantillons est calculée à la fin de ce tableau. La raie à 98 keV permet donc d'obtenir des teneurs en uranium plus rapidement que la raie à 1001 keV (d'environ un facteur 2 pour des teneurs comprises entre 200 à 5000 ppmu) avec une incertitude du même ordre



(environ 10 %). De plus, rappelons que cette raie, combinée à l'utilisation de la raie à 92 keV permet d'alerter l'opérateur en cas d'hétérogénéité potentielle de l'échantillon.

**Tableau 21 : Incertitudes relatives associées à  $C_{mU}(98\text{ keV})$ . En fond vert, les trois incertitudes qui composent l'incertitude totale (en fond gris-bleu).**

| Incertainces   | ORANO   | LMN  | Commentaires  |
|--|---|--|---|
| ① $\frac{\sigma_{Sn(98\text{ keV})}}{Sn(98\text{ keV})}$   | Min : 0.17 %<br>Max : 95 %<br>Moyenne : 7.1 % | Min : 0.65 %<br>Max : 25 %<br>Moyenne : 4.35 % | Incertaince due à la statistique et à l'ajustement gaussien. Une forte incertaince est observée pour les échantillons de très faible teneurs (< 50 ppmu)  |
| $\frac{\sigma_{Eff_{98\text{ keV}}}}{Eff_{98\text{ keV}}}$   | 10 %<br>(ISOCS)                               | 7 %<br>(MCNP)                                  | Incertaince due à la minéralogie, la modélisation du détecteur Falcon ainsi que la statistique des simulations MCNP. On note que les effets induits par l'auto-atténuation de l'uranium ne sont pas corrigés par le logiciel ISOCS dans le cas des mesures réalisées par ORANO Mining   |
| $\frac{\sigma_{I_{98\text{ keV}}(^{234m}_{91}\text{Pa})}}{I_{98\text{ keV}}(^{234m}_{91}\text{Pa})}$ | 1.26 %  |  | Bibliothèque LARA   |
| $\frac{\sigma_{I_{98\text{ keV}}(^{226}_{88}\text{Ra})}}{I_{98\text{ keV}}(^{226}_{88}\text{Ra})}$   | 2.85 %  |  |   |
| $\frac{\sigma_{I_{98\text{ keV}}(^{223}_{88}\text{Ra})}}{I_{98\text{ keV}}(^{223}_{88}\text{Ra})}$   | 2.57 %  |  |   |
| ② $\frac{\sigma_{CE_{Passif}}}{CE_{Passif}}$   | 10.03 %                                       | 7.20 %   | Incertaince relative du coefficient d'étalonnage passif. Cette incertaince dépend seulement des incertitudes liées à la bibliothèque LARA et à l'efficacité de détection à 98 keV calculée avec ISOCS (ORANO) et MCNP (LMN). Elle est donc constante pour tous les échantillons mais diffère suivant l'étude expérimentale étudiée : $\approx 10\%$ pour ORANO et $\approx 7\%$ pour le LMN.            |
| $\frac{\sigma_{\eta_{fluo}(E_{\gamma}, d, h)}}{\eta_{fluo}(E_{\gamma}, d, h)}$                       | 20 %  |  | L'incertaince sur les rendements de fluorescence a été arbitrairement fixée à une valeur commune de 20 % pour les 6 énergies (185 keV, 242 keV, 295 keV, 352 keV, 609 keV et 1120 keV). Cette incertaince prend en compte celle liée à l'étude multiparamétrique sur le rendement de fluorescence (voir annexe A.3) ainsi que celle sur le ratio de deux aires nettes calculé par MCNP (voir II.4.2.2). |
| $\frac{\sigma_{S_{nette}(E_{\gamma})}}{S_{nette}(E_{\gamma})}$                                       | < 2 %   |  | Raies de très fortes intensités, l'incertaince statistique est faible   |
| $\frac{\sigma_F}{F}$   | 5 %   |  | Facteur correctif F, représentant le ratio entre la fluorescence induite par les 6 raies étudiées et la fluorescence induite par la totalité des émissions présentes dans les chaînes. Ce ratio vaut en moyenne 0.78 avec une incertaince définie à 5 % (voir Annexe A.3).  |
| ③ $\left(\frac{\sigma_{CE_{Fluo}}}{CE_{Fluo}}\right)_{moyenne}$                                      | 10.38 %                                       | 10.63 %  | Incertaince relative au coefficient d'étalonnage lié à la fluorescence. Elle reste relativement constante mais dépend de la valeur des différents rendements de fluorescence et ajustements gaussiens. Cette incertaince n'a pas d'impact à faible teneur en uranium car les émissions passives dominent.   |
| $\left(\frac{\sigma_{C_{mU}(98\text{ keV})}}{C_{mU}(98\text{ keV})}\right)_{moyenne}$                | <b>12.82 %</b>                                | <b>9.63 %</b>                                  | L'incertaince moyenne totale est dominée par l'incertaince sur l'efficacité de détection à 98 keV.<br>Notons qu'à forte teneur, l'incertaince sur le rendement de fluorescence n'est plus négligeable dans le calcul de l'incertaince totale  |

## II.8 Conclusion et perspectives

A la suite de l'implémentation du modèle numérique MCNP d'une géométrie « type » de mesure d'échantillon de minerai d'uranium avec un détecteur GeHP Falcon 5000, deux indicateurs présents dans les spectres gamma haute résolution mais jusqu'à présent non utilisés de façon combinée ont été étudiés. Le premier indicateur repose sur la raie à 92 keV constituée de deux rayonnements gamma du  $^{234}\text{Th}$  et d'un rayon X de  $^{235}\text{U}$ , le deuxième sur la raie à 98 keV principalement due au rayonnement  $\text{XK}_{\alpha 1}$  de fluorescence de l'uranium ainsi qu'à un rayon X du  $^{234\text{m}}\text{Pa}$ . Des études paramétriques ont permis de quantifier la dépendance de ces deux indicateurs à plusieurs paramètres influents : la densité, la hauteur de remplissage, la minéralogie et l'hétérogénéité de l'échantillon. Chaque approche a été testée grâce aux spectres expérimentaux d'échantillons de minerai d'uranium en provenance de Mongolie fournis par ORANO Mining, ainsi qu'avec des mesures réalisées sur d'autres échantillons couvrant une plus large plage de teneurs et d'équilibres radioactifs au sein même du Laboratoire de Mesures Nucléaires pendant la thèse.

De plus, une étude sur l'optimisation des paramètres d'acquisition et de mise en forme des impulsions du détecteur Falcon 5000 a permis de mieux corriger les pertes de comptage dues au temps mort à forte teneur en uranium, et ce jusqu'à 100 000 ppm<sub>U</sub>.

Le principal avantage de ces deux raies est un gain de temps significatif par rapport à l'utilisation de la raie gamma à 1001 keV du  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  qui nécessite plusieurs heures de comptage, alors que ces nouveaux indicateurs permettraient des temps de mesure de seulement quelques minutes.

Ce chapitre a permis de démontrer la validité des différentes teneurs en uranium calculées avec la raie à 92 keV et celle à 98 keV qui sont en accord avec les teneurs données par ORANO Mining. **Les temps de comptage pourront être diminués en moyenne d'un facteur 65 dans le cas homogène avec l'utilisation de la raie à 92 keV et d'un facteur supérieur à 2 pour des échantillons compris entre 200 et 5000 ppm<sub>U</sub> (croissant avec la teneur, un facteur 70 à 100 000 ppm<sub>U</sub>) avec la raie à 98 keV par rapport à ce qui se fait actuellement en mesure in-situ ou en laboratoire.**

Cependant, l'intérêt industriel ne réside pas seulement dans une diminution du temps de comptage. En effet, comme démontré dans ce chapitre, une combinaison des nouveaux indicateurs de la teneur en uranium permet d'alerter l'opérateur sur la présence possible d'une hétérogénéité de l'échantillon et assure donc à ORANO Mining une fiabilité accrue sur le résultat. Rappelons que l'utilisation habituelle de la raie à 1001 keV peut être entachée d'un fort biais dans le cas d'une hétérogénéité de l'échantillon (facteur 2 pour le cas d'école le plus défavorable étudié). On peut donc imaginer ce type de mesure directement sur des carottes de minerai issues de puits de forage, sans concassage nécessaire ce qui représente, en plus d'un gain de temps de mesure, un gain pour l'opérateur. En effet, une première mesure peut être réalisée sans concassage, et dans le cas où les teneurs obtenues sur les différents indicateurs ne sont pas égales, alors seulement le concassage de la carotte est nécessaire.

Cette nouvelle méthode de caractérisation de la teneur en uranium, couplée à une détection d'hétérogénéité, a permis de proposer à notre partenaire ORANO Mining un procédé industrialisable qui a fait l'objet d'une demande de dépôt de brevet le 27 février 2018 sous le n°18 51744 [50].



## **Chapitre III :**

# *Nouvelles méthodes de spectrométrie gamma basse résolution*



## III.1 Introduction

L'objectif de ce chapitre est de définir une nouvelle méthode d'évaluation de la teneur en uranium d'échantillons de minerai concassé par spectrométrie gamma basse résolution. Cette nouvelle méthode se base sur l'analyse par bandes d'énergie décrite initialement dans le chapitre d'introduction de ce manuscrit (§ I.3.2.3) et mise au point en 1966 par J .M Domingos et A.A.Melo [34].

De manière simplifiée pour notre application, nous utiliserons une décomposition en trois zones d'énergie distinctes du spectre :

- 52 à 108 keV pour mesurer la contribution de l'uranium dans le spectre grâce à l'émission à 63 keV et 92 keV du  $^{234}\text{Th}$ ,
- 560 à 660 keV pour mesurer la contribution de fin de chaîne de l'uranium. Cette zone est dominée par l'émission d'un rayonnement gamma du  $^{214}\text{Bi}$  à 609 keV,
- 2.46 à 2.76 MeV afin de prendre en compte de façon très sélective le  $^{232}\text{Th}$  grâce à l'émission d'un rayonnement gamma du  $^{208}\text{Tl}$  à 2614 keV. Cette zone ne sera pas étudiée dans la suite de ce manuscrit car les échantillons ont une teneur en thorium relativement faible (inférieure à 20 ppm<sub>TH</sub>) et par conséquent, comme on le verra par la suite, la contribution de la chaîne du  $^{232}\text{Th}$  est négligeable dans les deux premières zones étudiées. Remarquons néanmoins que, en cas d'échantillons riches en thorium, on pourrait aisément calculer la teneur en thorium grâce à la raie à 2614 keV et soustraire sa contribution dans les deux premières zones du spectre avant de calculer la teneur en uranium comme s'il n'y avait pas de thorium.

Les études sont effectuées pour des échantillons de minerai préalablement concassés et disposés dans un porte échantillon en PVC. Les spectres gamma sont mesurés avec un détecteur NaI de dimension 3"x3" (ortho cylindre de 7.62 cm de diamètre et de longueur) à disposition au Laboratoire de Mesures Nucléaires.

Dans un premier temps, la modélisation MCNP de ce détecteur est validée grâce à une comparaison avec l'efficacité expérimentale mesurée avec une source étalon à 30 cm de sa face avant. La méthode qui exploite des bandes d'énergie issues du spectre gamma est ensuite exposée de manière matricielle pour la résolution d'un système de 2 équations (les comptages dans les 2 bandes d'énergie) à 2 inconnues (les activités en uranium et en radon, ce dernier représentant le bas de la chaîne radioactive de l'uranium), puis simplifiée sous une forme analytique pour faciliter l'étude des paramètres d'influence et la mise en œuvre de la méthode.

Puis nous étudierons la robustesse de cette méthode vis-à-vis du déséquilibre potentiel des chaînes de filiation de l'uranium et, par simulation numérique, sa sensibilité aux caractéristiques de l'échantillon analysé (hauteur, densité, teneur en uranium, hétérogénéités potentielles) que nous prendrons en compte par l'implémentation d'un facteur correctif.

Cette méthode est ensuite validée expérimentalement sur les 38 échantillons mis à disposition par ORANO Mining et une étude sur l'optimisation de la bande d'énergie caractéristique de l'uranium est menée afin de réduire les incertitudes induites par la variabilité des caractéristiques de l'échantillon.

Enfin, nous estimerons l'incertitude globale de la méthode et notamment les temps de mesure nécessaires à l'obtention d'une précision suffisante.

## III.2 Simulation de la sonde NaI

Afin d'aborder la nouvelle méthode de caractérisation de la teneur en uranium par spectrométrie gamma basse résolution, il a été nécessaire de modéliser le détecteur NaI – 76 B76 / 3M (référence interne LMN 390) disponible au Laboratoire de Mesures Nucléaires. En effet, la méthode de mesure de la teneur

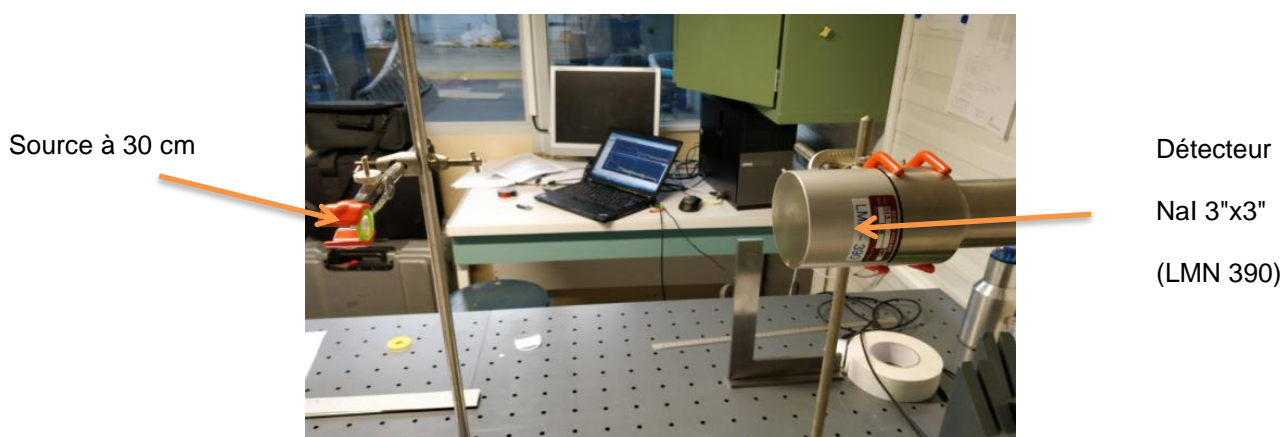
en uranium nécessite la connaissance de l'efficacité de détection du détecteur NaI pour une plage en énergie allant de 50 à 2000 keV. La résolution en énergie du détecteur NaI est aussi mesurée afin de l'implémenter dans les simulations. Les dimensions du détecteur NaI sont prises égales aux données constructeur (voir Figure 89). De nombreuses études de caractérisation de NaI ont déjà été menées et permettent de valider la démarche suivie dans cette partie [25], [56].

### III.2.1 Efficacité de détection à 30 cm : sources utilisées et géométrie de mesure

Les mesures des efficacités de détection ont été réalisées dans l'axe du détecteur NaI et pour une distance source-détecteur de 30 cm (voir Figure 86). Les sources utilisées sont le  $^{133}\text{Ba}$ , l' $^{241}\text{Am}$ , l' $^{152}\text{Eu}$ , le  $^{60}\text{Co}$ , l' $^{88}\text{Y}$  et le  $^{137}\text{Cs}$ . Ces 6 sources permettent de balayer une plage d'émission gamma allant de 59 à 1836 keV (voir Tableau 22). Les spectres expérimentaux sont disponibles en annexe A.8. Les différentes raies sélectionnées ne présentent pas d'interférence, c'est-à-dire qu'il n'y a pas d'autre rayonnement  $\gamma$  proche en énergie.

**Tableau 22 : 6 sources utilisées pour mesurer l'efficacité de détection**

| Nucléides         | Energie d'émission (keV) | Intensité d'émission (%) [6] |
|-------------------|--------------------------|------------------------------|
| $^{133}\text{Ba}$ | 81.00                    | 34.06                        |
|                   | 356.02                   | 62.05                        |
| $^{241}\text{Am}$ | 59.54                    | 35.9                         |
| $^{152}\text{Eu}$ | 121.78                   | 28.58                        |
|                   | 244.70                   | 7.55                         |
|                   | 778.90                   | 12.94                        |
|                   | 1408.01                  | 21.01                        |
| $^{60}\text{Co}$  | 1173.50                  | 99.97                        |
|                   | 1332.50                  | 99.99                        |
| $^{88}\text{Y}$   | 898.04                   | 93.70                        |
|                   | 1836.07                  | 99.35                        |
| $^{137}\text{Cs}$ | 661.66                   | 84.99                        |



**Figure 86 : Mesure de l'efficacité de détection à 30 cm.**

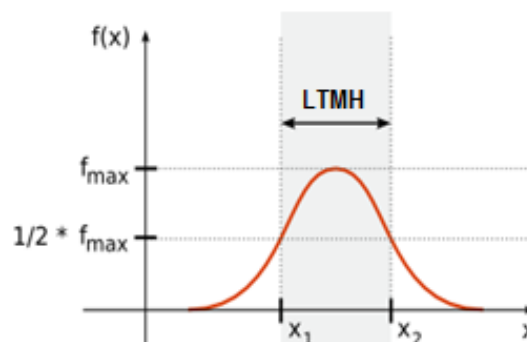
### III.2.2 Résultats et analyse

#### III.2.2.1 Largeur à mi-hauteur

Le tableau suivant récapitule le taux de comptage et la largeur totale à mi-hauteur (LTMH) pour une partie des raies étudiées afin de balayer une plage en énergie allant de 59 keV à 1836 keV.

**Tableau 23 : Taux de comptage et largeur à mi-hauteur (LTMH) mesurés pour chaque source**

| Energie d'émission (keV)      | Taux de comptage (coups.s <sup>-1</sup> )<br>30 cm | LTMH (keV) |
|-------------------------------|--|------------|
| 59.5412 ( <sup>241</sup> Am)  | 422.43   | 7.366      |
| 80.9971 ( <sup>133</sup> Ba)  | 508.08   | 8.642      |
| 121.7817 ( <sup>152</sup> Eu) | 320.01   | 11.067     |
| 244.6974 ( <sup>152</sup> Eu) | 70.39  | 21.713     |
| 356.017 ( <sup>133</sup> Ba)  | 736.55   | 31.998     |
| 661.657 ( <sup>137</sup> Cs)  | 541.31   | 44.331     |
| 778.9 ( <sup>152</sup> Eu)    | 54.67  | 48.96      |
| 898.042 ( <sup>88</sup> Y)    | 55.64  | 53.403     |
| 1173.501 ( <sup>60</sup> Co)  | 115.67   | 58.101     |
| 1332.501 ( <sup>60</sup> Co)  | 107.90   | 62.067     |
| 1408.006 ( <sup>152</sup> Eu) | 54.16  | 65.317     |
| 1836.070 ( <sup>88</sup> Y)   | 32.54  | 77.095     |

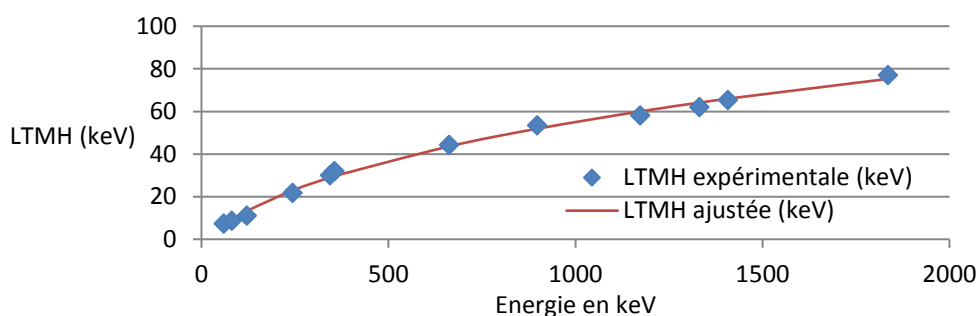


Dès lors, on peut ajuster une courbe de résolution en énergie du détecteur en utilisant les résolutions expérimentales. La résolution en énergie d'un détecteur, simulé avec MCNP, est communément exprimée sous la forme :

$$LTMH(E) = a + b\sqrt{E + cE^2}$$

Une analyse paramétrique réalisée avec le solveur Excel reposant sur la méthode des moindres carrés a permis d'obtenir la valeur des facteurs a, b et c :

$$a = -10.277851 \text{ keV}, b = 2.14630756 \text{ keV}^{1/2} \text{ et } c = -7.32758 \times 10^{-5} \text{ keV}^{-1}$$


**Figure 87 : Résolutions expérimentale et calculée suite à l'étude paramétrique réalisée avec le solveur Excel.**

### III.2.2.2 Efficacité de détection expérimentale à 30 cm

L'efficacité de détection, notée  $Eff(E)$ , à une distance et à une énergie données, est définie par :

$$Eff(E) = \frac{Sn(E)}{Tc \times A(Source) \times I_E(Source)}$$

Avec :

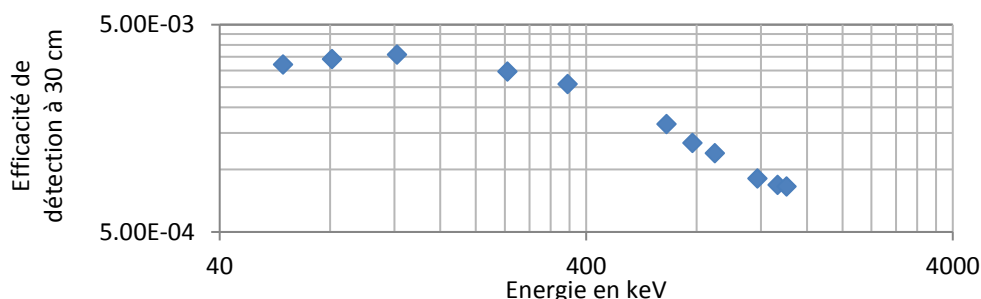
- $Sn(E)$  : surface nette de la raie à l'énergie E,
- $Tc$  : temps de comptage actif (en secondes),
- $A(Source)$  : activité de la source utilisée (en Bq = s<sup>-1</sup>),
- $I_E(Source)$  : intensité d'émission correspondant à l'émission d'un rayonnement gamma d'énergie E (nombre de photons émis par désintégration).



Le tableau suivant représente les efficacités de détection calculées à 30 cm pour le détecteur NaI.

**Tableau 24 : Mesure de l'efficacité de détection à 30 cm associée au détecteur NaI**

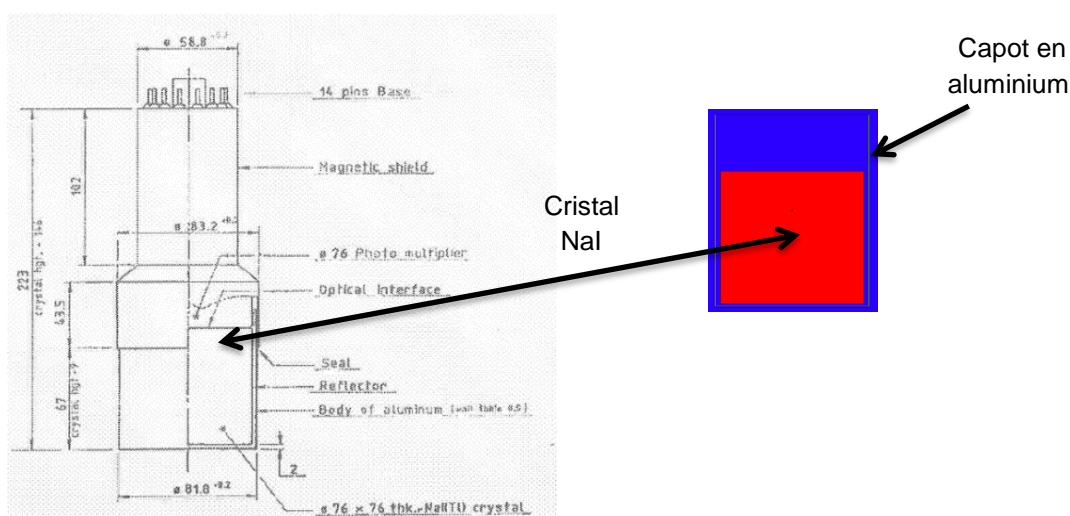
| Energie d'émission (keV)      | Taux de comptage (coups.s <sup>-1</sup> ) | Activité de la source (Bq = s <sup>-1</sup> ) | Intensité d'émission (%) | Efficacité de détection à 30 cm |
|-------------------------------|---|---|--------------------------|---------------------------------|
| 59.5412 ( <sup>241</sup> Am)  | 422.43                                    | 3.66 x 10 <sup>5</sup>                        | 35.90 %                  | 3.21 x 10 <sup>-3</sup>         |
| 80.9971 ( <sup>133</sup> Ba)  | 520.54                                    | 4.24 x 10 <sup>5</sup>                        | 35.94 %                  | 3.42 x 10 <sup>-3</sup>         |
| 121.7817 ( <sup>152</sup> Eu) | 320.01                                    | 3.13 x 10 <sup>5</sup>                        | 28.41 %                  | 3.60 x 10 <sup>-3</sup>         |
| 244.6974 ( <sup>152</sup> Eu) | 70.39                                     | 3.13 x 10 <sup>5</sup>                        | 7.55 %                   | 2.98 x 10 <sup>-3</sup>         |
| 356.017 ( <sup>133</sup> Ba)  | 777.38                                    | 4.24 x 10 <sup>5</sup>                        | 62.05 %                  | 2.59 x 10 <sup>-3</sup>         |
| 661.657 ( <sup>137</sup> Cs)  | 541.31                                    | 3.83 x 10 <sup>5</sup>                        | 84.99 %                  | 1.66 x 10 <sup>-3</sup>         |
| 778.9 ( <sup>152</sup> Eu)    | 54.67                                     | 3.13 x 10 <sup>5</sup>                        | 12.97 %                  | 1.35 x 10 <sup>-3</sup>         |
| 898.042 ( <sup>88</sup> Y)    | 55.64                                     | 4.94 x 10 <sup>4</sup>                        | 93.70 %                  | 1.20 x 10 <sup>-3</sup>         |
| 1173.501 ( <sup>60</sup> Co)  | 115.67                                    | 1.28 x 10 <sup>5</sup>                        | 99.97 %                  | 9.06 x 10 <sup>-4</sup>         |
| 1332.501 ( <sup>60</sup> Co)  | 107.90                                    | 1.28 x 10 <sup>5</sup>                        | 99.99 %                  | 8.45 x 10 <sup>-4</sup>         |
| 1408.006 ( <sup>152</sup> Eu) | 54.16                                     | 3.13 x 10 <sup>5</sup>                        | 20.85 %                  | 8.29 x 10 <sup>-4</sup>         |
| 1836.070 ( <sup>88</sup> Y)   | 32.54                                     | 4.94 x 10 <sup>4</sup>                        | 99.35 %                  | 6.63 x 10 <sup>-4</sup>         |



**Figure 88 : Efficacité de détection expérimentale à 30 cm**

### III.2.3 Modélisation du détecteur NaI et comparaison expérience - calcul

Les dimensions du détecteur NaI données par le constructeur permettent une modélisation du détecteur. La Figure 89 représente les dimensions types d'un détecteur NaI ainsi que la modélisation MCNP associée (fichier d'entrée MOD01-NaI). Il est à noter, en première approximation, qu'aucun réflecteur n'a été simulé car il induit de très faibles effets sur l'efficacité de détection [56].



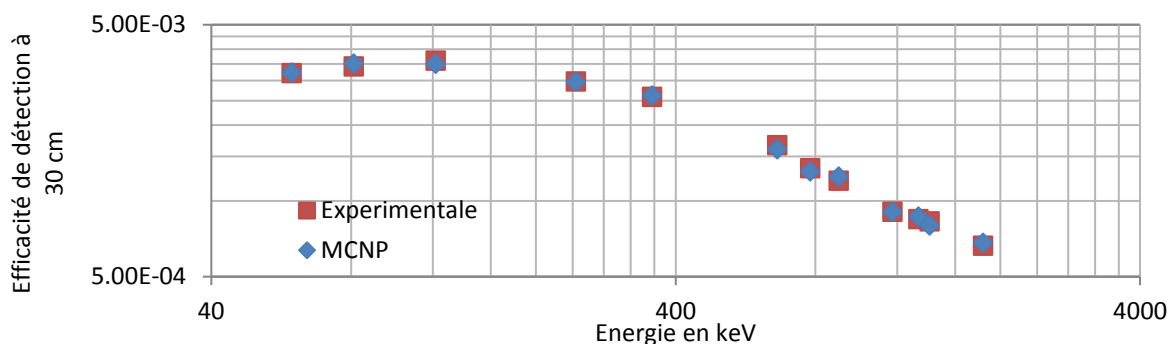
**Figure 89 : NaI - Données constructeur et modélisation MCNP associée (MOD01-NaI)**

## - Comparaison expérience-calcul

Une source ponctuelle placée à 30 cm de la face avant du détecteur a été simulée avec MCNP afin de calculer les efficacités de détection pour la modélisation MOD01. Ces efficacités de détection sont ensuite comparées aux efficacités expérimentales. Le tableau suivant récapitule les efficacités expérimentales et modélisées grâce au schéma constructeur ainsi que leur différence relative associée (DR). La Figure 90 montre cette comparaison sous forme graphique. Les incertitudes sont inférieures à 5 % pour la mesure et 1 % pour le calcul.

**Tableau 25 : Comparaison des efficacités de détection expérimentales et modélisées (MOD01)**

| Energie d'émission (keV)      | Efficacité de détection à 30 cm |                         |                     |
|-------------------------------|---------------------------------|-------------------------|---------------------|
|                               | Expérimentale                   | MCNP                    | DR = (MCNP-EXP)/EXP |
| 59.5412 ( <sup>241</sup> Am)  | 3.21 x 10 <sup>-3</sup>         | 3.23 x 10 <sup>-3</sup> | 0.34 %              |
| 80.9971 ( <sup>133</sup> Ba)  | 3.42 x 10 <sup>-3</sup>         | 3.51 x 10 <sup>-3</sup> | 2.63 %              |
| 121.7817 ( <sup>152</sup> Eu) | 3.60 x 10 <sup>-3</sup>         | 3.49 x 10 <sup>-3</sup> | -2.87 %             |
| 244.6974 ( <sup>152</sup> Eu) | 2.98 x 10 <sup>-3</sup>         | 2.97 x 10 <sup>-3</sup> | -0.22 %             |
| 356.017 ( <sup>133</sup> Ba)  | 2.59 x 10 <sup>-3</sup>         | 2.62 x 10 <sup>-3</sup> | 1.21 %              |
| 661.657 ( <sup>137</sup> Cs)  | 1.66 x 10 <sup>-3</sup>         | 1.60 x 10 <sup>-3</sup> | -3.61 %             |
| 778.9 ( <sup>152</sup> Eu)    | 1.35 x 10 <sup>-3</sup>         | 1.31 x 10 <sup>-3</sup> | -2.81 %             |
| 898.042 ( <sup>88</sup> Y)    | 1.20 x 10 <sup>-3</sup>         | 1.25 x 10 <sup>-3</sup> | 3.72 %              |
| 1173.501 ( <sup>60</sup> Co)  | 9.06 x 10 <sup>-4</sup>         | 9.05 x 10 <sup>-4</sup> | -0.07 %             |
| 1332.501 ( <sup>60</sup> Co)  | 8.45 x 10 <sup>-4</sup>         | 8.65 x 10 <sup>-4</sup> | 2.46 %              |
| 1408.006 ( <sup>152</sup> Eu) | 8.29 x 10 <sup>-4</sup>         | 7.98 x 10 <sup>-4</sup> | -3.78 %             |
| 1836.070 ( <sup>88</sup> Y)   | 6.63 x 10 <sup>-4</sup>         | 6.81 x 10 <sup>-4</sup> | 2.70 %              |



**Figure 90 : Efficacités expérimentale et modélisée à 30 cm**

La modélisation du détecteur NaI avec les données constructeurs permet d'obtenir une efficacité MCNP proche de l'efficacité expérimentale. On remarque une différence relative située entre -3.78 % et 3.72 % qui peut être expliquée par l'incertitude sur l'activité des sources (comprise entre 1.5 et 3 %).

En conclusion, cette étude préliminaire a permis d'obtenir la résolution en énergie du détecteur qui sera utilisée par la suite dans la méthode par bandes d'énergie. De plus, la modélisation du détecteur NaI a pu être validée grâce à des mesures d'efficacité à 30 cm du détecteur.

### III.3 Méthode d'analyse par bandes d'énergie

#### III.3.1 Simulation de la scène de mesure

Une géométrie de mesure « type » a été modélisée (Figure 91) avec le code de transport Monte-Carlo MCNP6 pour un échantillon de minerai d'uranium standard dans des conditions proches de celles expérimentalement observées.

La géométrie de mesure se base sur les mesures expérimentales menées au Laboratoire de Mesures Nucléaires. Les échantillons concassés mis à disposition par ORANO Mining possèdent en moyenne une densité de **1.3** prise comme densité de l'échantillon « type » dans les simulations. La hauteur de remplissage de l'échantillon est de **50 mm** pour un pot en PVC de dimension standard (hauteur 10 cm). La teneur en uranium de l'échantillon « type » est de **1 000 ppm<sub>U</sub>**, en thorium de 15 ppm<sub>Th</sub>, en potassium 3.6 % et sa minéralogie est du **SiO<sub>2</sub>**. Il est entouré d'un collimateur en plomb de 4.5 cm d'épaisseur pour atténuer le bruit de fond provenant de la pièce. L'échantillon est entouré de 3 mm de cuivre afin d'absorber les raies X de fluorescence du plomb (72.80 keV, 74.97 keV, 84.45 keV et 87.30 keV). Le détecteur utilisé est un détecteur NaI 3"x3".

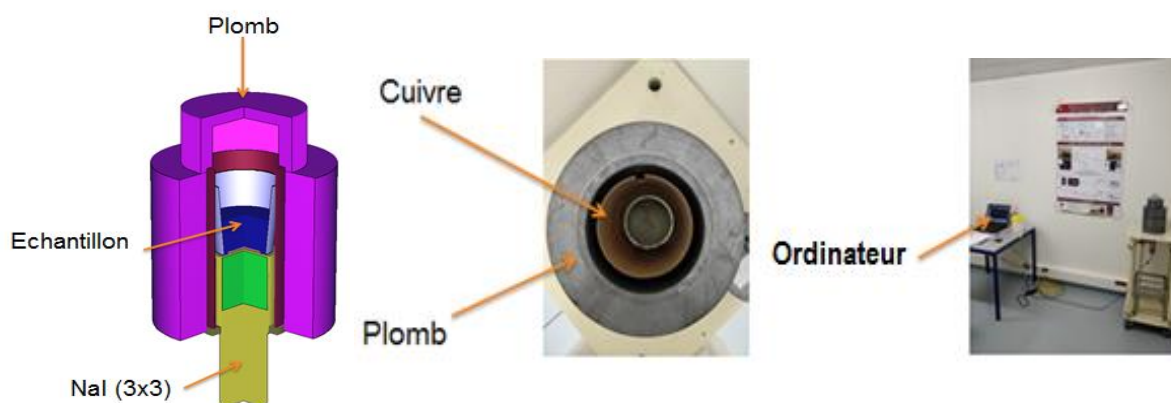
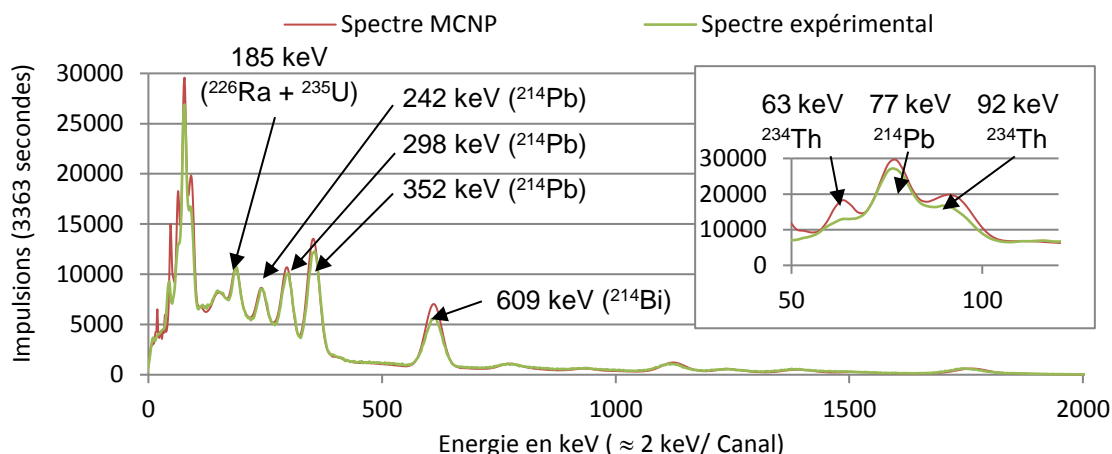


Figure 91 : Modèle MCNP de la mesure d'un échantillon "type" et photographie de la scène de mesure

### III.3.2 Comparaison expérience-calcul pour une mesure d'échantillon

Afin de s'assurer de la bonne modélisation de la scène de mesure, il a été décidé de comparer un spectre expérimental issu d'un échantillon choisi de teneur représentative ( $< 1\,000\text{ ppm}_U$ ) parmi ceux mis à disposition par ORANO Mining. La teneur en uranium de l'échantillon est de  $700\text{ ppm}_U$  et a été mesurée par ORANO Mining via spectrométrie gamma haute résolution en utilisant les raies à 92 keV issu du  $^{234}\text{Th}$ . L'échantillon a une densité de 1.14 et une hauteur de remplissage de 4.7 cm. L'équilibre U/Ra implémenté dans la simulation vaut 1. Cette valeur d'équilibre a été mesurée au préalable par ORANO Mining en plaçant l'échantillon dans une résine afin de s'assurer que le radium est en équilibre avec le  $^{214}\text{Bi}$  et  $^{214}\text{Pb}$  (le phénomène d'évaporation radon étant minimisé par la résine). La mesure du déséquilibre U/Ra peut ainsi être réalisée grâce aux raies du  $^{234}\text{Th}$  (pour l'uranium) et les raies du  $^{214}\text{Bi}$  et  $^{214}\text{Pb}$  (pour le radium), et il équivaut au déséquilibre U/Rn.

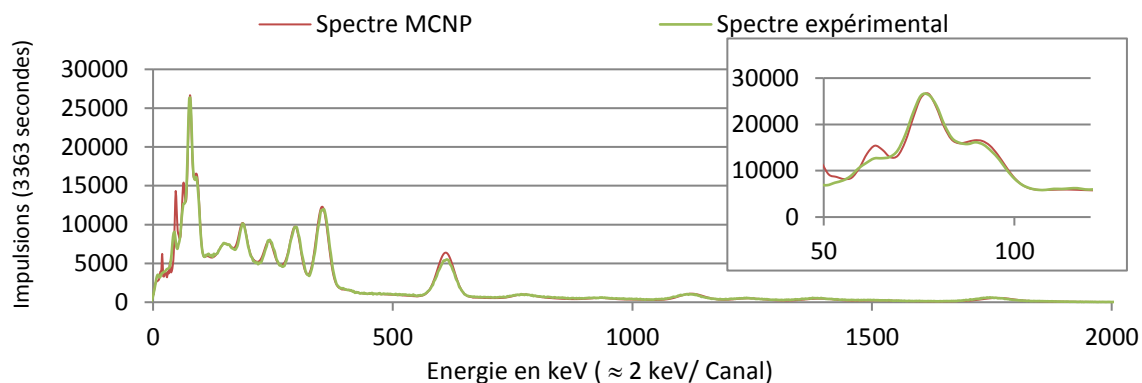
La Figure 92 représente une comparaison du spectre simulé et du spectre expérimental qui confirme la validité de la simulation MCNP du détecteur NaI. Néanmoins, on remarque une surestimation des aires nettes des raies issues du  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$  qui laisse penser à un déséquilibre entre le haut et le bas de chaîne de filiation de l'uranium pour cet échantillon. Ce déséquilibre peut être dû à l'évaporation radon qui est possible lors des mesures au Laboratoire de Mesures Nucléaires du fait que le pot utilisé n'est pas complètement hermétique. De plus, on remarque une surestimation du nombre de coups calculé dans la zone 50-110 keV. Cette surestimation peut être expliquée par la bibliothèque d'émission gamma utilisée (ici Table Of Isotopes [47]) dans la simulation pour le  $^{234}\text{Th}$  : en effet, de fortes variations d'intensité d'émission existent pour ses deux rayonnements gamma à 63 et 92 keV, voir Figure 42. Cette remarque a déjà été observée dans le chapitre précédent et est de nouveau observée en spectrométrie gamma basse résolution.



**Figure 92 : Comparaison du spectre MCNP et spectre expérimental pour un échantillon de 700 ppm<sub>U</sub> pour un déséquilibre simulé U/Rn = 1.0**

Dans le cas de l'utilisation de la bibliothèque LARA combinée à l'implémentation d'un déséquilibre U/Rn = 1.1 (évaporation radon), il s'avère que le spectre MCNP est en meilleure adéquation avec le spectre expérimental (voir Figure 92 vs Figure 93) ce qui permet de valider, moyennant ces ajustements ad hoc, le modèle de l'échantillon.

**Remarque :** La bibliothèque LARA semble donc être la plus représentative des émissions du <sup>234</sup>Th. En effet, elle permet d'obtenir pour toutes les mesures de spectrométrie gamma basse et haute résolution les résultats les plus cohérents.



**Figure 93 : Comparaison du spectre MCNP et spectre expérimental pour un échantillon de 700 ppm<sub>U</sub> pour un déséquilibre simulé U/Rn = 1.1**

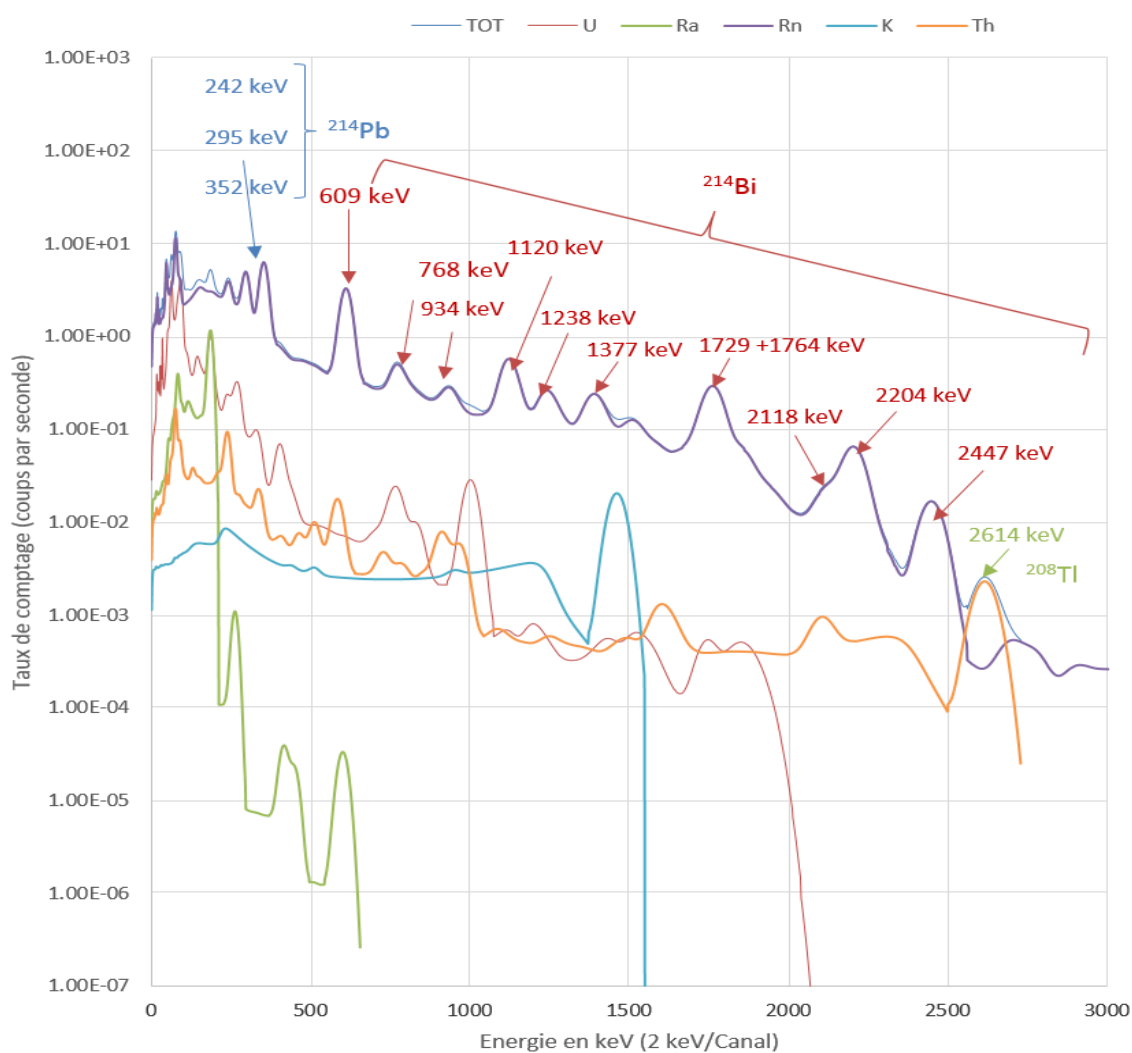
### III.3.3 Description de la méthode d'analyse par bandes d'énergie

Lors des simulations de l'échantillon, la source simulée prend place dans le volume de l'échantillon. Elle contient 5 groupes de nucléides nommés respectivement : « U », « Rn », « Ra », « Th » et « K ». La composition de chaque groupe est définie dans le tableau suivant et est réalisée suivant les temps de décroissance de chaque nucléide dans les chaînes de filiation de l'<sup>238</sup>U, l'<sup>235</sup>U et le <sup>232</sup>Th et du <sup>40</sup>K.

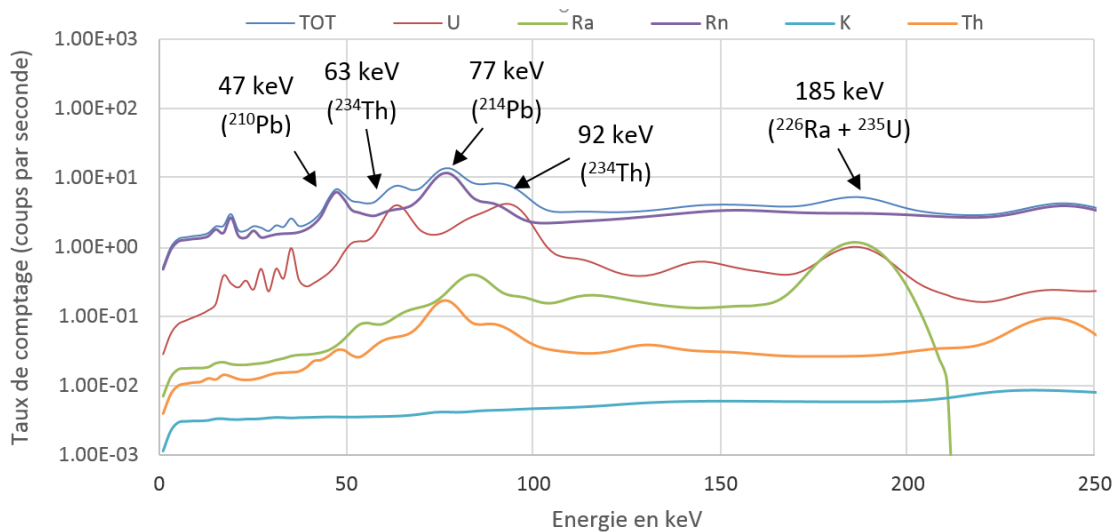
**Tableau 26 : Groupes de nucléides sélectionnés pour l'étude par bandes d'énergie**

| Groupe | Nucléides associés   |
|--------|--|
| U      | <sup>234m</sup> Pa, <sup>211</sup> Pb, <sup>223</sup> Ra, <sup>219</sup> Rn, <sup>227</sup> Th, <sup>230</sup> Th, <sup>231</sup> Th, <sup>234</sup> Th, <sup>235</sup> U, <sup>238</sup> U  |
| Ra     | <sup>226</sup> Ra  |
| Rn     | <sup>214</sup> Bi, <sup>210</sup> Pb, <sup>214</sup> Pb  |
| Th     | <sup>232</sup> Th, <sup>228</sup> Ra, <sup>228</sup> Ac, <sup>228</sup> Th, <sup>224</sup> Ra, <sup>220</sup> Rn, <sup>216</sup> Po, <sup>212</sup> Pb, <sup>212</sup> Bi, <sup>208</sup> Tl |
| K      | <sup>40</sup> K  |

Le spectre total est le spectre cumulé des 5 groupes de nucléides représentés sur la figure suivante.



**Figure 94 : Spectres simulés des 5 groupes de nucléides pour l'échantillon « type » de 1000 ppmu en équilibre, 15 ppm<sub>Th</sub> et 3 % de K (segmentation de 2 keV/canal).**



**Figure 95 : Spectres simulés des 5 groupes de nucléides pour l'échantillon "type" entre 0 et 250 keV**

Ce graphique met en évidence la large domination du groupe « Rn » dans le spectre total. Néanmoins, on peut remarquer sur la Figure 95 pour une énergie inférieure à 110 keV, que le spectre « U » composé des nucléides du début de chaîne de l'uranium devient non négligeable. Remarquons que la raie à 1460 keV issue du  $^{40}\text{K}$  est noyée dans les émissions dues au groupe « Rn ». Il semble donc a priori très difficile, dans le cas de l'étude d'échantillons en spectrométrie gamma avec détecteur NaI, d'obtenir la concentration en potassium.

### III.3.3.1 Définition du système d'équations à résoudre

Afin de connaître la teneur respective des 5 groupes de nucléides, le spectre est décomposé en 5 zones distinctes :

- zone U : de 50 à 110 keV (notée  $Z_U$ ) représentant la zone du spectre la plus influencée par le groupe « U » (émissions à 63 et 92 keV du  $^{234}\text{Th}$  et émission d'un rayon X de fluorescence de l'uranium à 98 keV)
- zone Ra : de 150 à 230 keV (notée  $Z_{Ra}$ ) afin d'encadrer l'émission d'un rayonnement gamma à 185 keV issu du  $^{226}\text{Ra}$
- zone Rn : de 560 à 660 keV (notée  $Z_{Rn}$ ) afin d'encadrer le rayonnement gamma le plus intense du groupe « Rn » issu du  $^{214}\text{Bi}$  à 609 keV
- zone K : de 1400 à 1550 keV (notée  $Z_K$ ) pour encadrer le rayonnement gamma à 1460 keV du  $^{40}\text{K}$
- zone Th : de 2560 à 2760 keV (notée  $Z_{Th}$ ) afin d'encadrer la raie à 2614 keV due au  $^{208}\text{Tl}$  présent dans la chaîne de filiation du  $^{232}\text{Th}$

Chaque groupe de nucléides induit un taux de comptage ( $\text{s}^{-1}$ ) dans chaque zone énergétique, notée  $C_U$ ,  $C_{Ra}$ ,  $C_{Rn}$ ,  $C_K$  et  $C_{Th}$ . Ces taux de comptage peuvent être reliés aux différentes activités (en Bq) des 5 groupes de nucléides. Si on note  $A(U)$ ,  $A(\text{Th})$ ,  $A(\text{Rn})$ ,  $A(K)$  et  $A(\text{Ra})$  les activités associées aux groupes uranium, thorium, radon, potassium et radium, on a :

$$(a) \begin{cases} C_U = a1 \times A(U) + a2 \times A(\text{Ra}) + a3 \times A(\text{Rn}) + a4 \times A(K) + a5 \times A(\text{Th}) \\ C_{Ra} = b1 \times A(U) + b2 \times A(\text{Ra}) + b3 \times A(\text{Rn}) + b4 \times A(K) + b5 \times A(\text{Th}) \\ C_{Rn} = c1 \times A(U) + c2 \times A(\text{Ra}) + c3 \times A(\text{Rn}) + c4 \times A(K) + c5 \times A(\text{Th}) \\ C_K = d1 \times A(U) + d2 \times A(\text{Ra}) + d3 \times A(\text{Rn}) + d4 \times A(K) + d5 \times A(\text{Th}) \\ C_{Th} = e1 \times A(U) + e2 \times A(\text{Ra}) + e3 \times A(\text{Rn}) + e4 \times A(K) + e5 \times A(\text{Th}) \end{cases}$$

**Remarque** : Dans le cas de l'échantillon type à l'équilibre de teneur 1 000 ppm<sub>U</sub>, de hauteur 5 cm et de densité 1.3,  $A(U) = A(\text{Ra}) = A(\text{Rn}) = 3192.53$  Bq. Par ailleurs, 15 ppm<sub>Th</sub> équivalent à une activité  $A(\text{Th}) = 15.61$  Bq et 3.67 % de K à une activité  $A(K) = 293$  Bq.

Les coefficients  $a1$  à  $e5$  représentent des taux de comptage ( $\text{s}^{-1}$ ) par Bq ( $\text{s}^{-1}$ ) et sont donc sans dimension. Ils dépendent des émissions gamma des différents groupes (U, Ra, Rn, Th et K), de la scène de mesure et du détecteur utilisé. Ils peuvent être obtenus par simulation en observant le nombre d'impulsions induit par chaque groupe de nucléides dans chaque zone énergétique. On peut dès lors définir trois matrices à partir du système d'équations (a). On note  $\mathcal{E}$  (notation usuelle pour « efficacité de détection ») la matrice des coefficients  $a1$  à  $e5$ ,  $S$  le vecteur mesure (« S » pour « spectre ») représentant les taux de comptage dans les zones U à Th et  $A$  la matrice représentant le vecteur résultat (« A » car elle est composée des différentes activités des 5 groupes).

$$\mathcal{E} = \begin{pmatrix} a1 & a2 & a3 & a4 & a5 \\ b1 & b2 & b3 & b4 & b5 \\ c1 & c2 & c3 & c4 & c5 \\ d1 & d2 & d3 & d4 & d5 \\ e1 & e2 & e3 & e4 & e5 \end{pmatrix} \quad S = \begin{pmatrix} C_U \\ C_{Ra} \\ C_{Rn} \\ C_K \\ C_{Th} \end{pmatrix} \quad A = \begin{pmatrix} A(U) \\ A(\text{Ra}) \\ A(\text{Rn}) \\ A(K) \\ A(\text{Th}) \end{pmatrix}$$

On a donc :

$$S = \varepsilon \times A$$

Les différentes activités associées à chaque groupe de nucléides ainsi que les déséquilibres peuvent par la suite être calculés par l'inversion de la matrice  $\varepsilon$  :

$$A = \varepsilon^{-1} \times S$$

Les différents coefficients  $a_1$  à  $e_5$  ont été calculés avec la simulation de l'échantillon « type » et sont représentés dans la matrice A suivante.

**Tableau 27 : Matrice  $\varepsilon$  de l'échantillon "type" (coefficients sans dimension, représentant des coups.s<sup>-1</sup> par Bq)**

| Matrice $\varepsilon$              | Groupe U                    | Groupe Ra                   | Groupe Rn                   | Groupe K                    | Groupe Th                   |
|------------------------------------|-----------------------------|-----------------------------|-----------------------------|-----------------------------|-----------------------------|
| <b>Zone U<br/>50 - 110 keV</b>     | $a_1 = 2.13 \times 10^{-2}$ | $a_2 = 1.70 \times 10^{-3}$ | $a_3 = 4.19 \times 10^{-2}$ | $a_4 = 4.22 \times 10^{-4}$ | $a_5 = 1.28 \times 10^{-1}$ |
| <b>Zone Ra<br/>150 - 230 keV</b>   | $b_1 = 5.61 \times 10^{-3}$ | $b_2 = 4.21 \times 10^{-3}$ | $b_3 = 3.83 \times 10^{-2}$ | $b_4 = 8.92 \times 10^{-4}$ | $b_5 = 7.50 \times 10^{-2}$ |
| <b>Zone Rn<br/>560 - 660 keV</b>   | $c_1 = 1.09 \times 10^{-4}$ | $c_2 = 2.32 \times 10^{-7}$ | $c_3 = 2.54 \times 10^{-2}$ | $c_4 = 4.23 \times 10^{-4}$ | $c_5 = 3.00 \times 10^{-2}$ |
| <b>Zone K<br/>1400 - 1550 keV</b>  | $d_1 = 1.27 \times 10^{-5}$ | $d_2 = 0$                   | $d_3 = 13.3 \times 10^{-3}$ | $d_4 = 12.5 \times 10^{-3}$ | $d_5 = 12.3 \times 10^{-3}$ |
| <b>Zone Th<br/>2560 - 2760 keV</b> | $e_1 = 0$                   | $e_2 = 0$                   | $e_3 = 1.10 \times 10^{-5}$ | $e_4 = 0$                   | $e_5 = 6.88 \times 10^{-3}$ |

La matrice inverse de  $\varepsilon$ , notée  $\varepsilon^{-1}$ , est la suivante :

**Tableau 28 : Matrice inverse  $\varepsilon^{-1}$  de l'échantillon "type" (coefficients sans dimension)**

| Matrice $\varepsilon^{-1}$       | Groupe U               | Groupe Ra              | Groupe Rn              | Groupe K              | Groupe Th           |
|----------------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|-----------------------|---------------------|
| <b>Zone U<br/>50 - 110 keV</b>   | $5.28 \times 10^1$     | $-2.13 \times 10^1$    | $-5.57 \times 10^1$    | 8.25                  | $-5.09 \times 10^2$ |
| <b>Zone Ra<br/>150-230 keV</b>   | $-6.83 \times 10^1$    | $2.65 \times 10^2$     | $-2.82 \times 10^2$    | $-3.49 \times 10^1$   | $-3.79 \times 10^2$ |
| <b>Zone Rn<br/>560-660 keV</b>   | $-2.26 \times 10^{-1}$ | $8.90 \times 10^{-2}$  | $4.05 \times 10^1$     | $-6.95 \times 10^1$   | $-1.71 \times 10^2$ |
| <b>Zone K<br/>1400-1550 keV</b>  | $2.99 \times 10^{-2}$  | $-9.11 \times 10^{-3}$ | $-5.34 \times 10^1$    | $4.10 \times 10^2$    | $9.36 \times 10^1$  |
| <b>Zone Th<br/>2560-2760 keV</b> | $3.63 \times 10^{-4}$  | $-1.43 \times 10^{-4}$ | $-6.51 \times 10^{-2}$ | $1.12 \times 10^{-2}$ | $1.46 \times 10^2$  |

Afin de vérifier la validité de la méthode d'inversion, le vecteur résultat A est calculé avec le vecteur mesure S de l'échantillon type. On obtient pour l'échantillon type :

$$S = \begin{pmatrix} C_U \\ C_{Ra} \\ C_{Rn} \\ C_K \\ C_{Th} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 209.21 \\ 154.95 \\ 82.13 \\ 11.35 \\ 0.14 \end{pmatrix} \text{ taux de comptage en s}^{-1}$$

$$\text{et un vecteur } A = \varepsilon^{-1} \times S = \begin{pmatrix} A(U) \\ A(Ra) \\ A(Rn) \\ A(K) \\ A(Th) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 3192.53 \\ 3192.53 \\ 3192.53 \\ 293.50 \\ 15.61 \end{pmatrix} \text{ activités en Bq}$$

Le vecteur A est bien en adéquation avec les activités implémentées dans l'échantillon type pour chaque groupe, ce qui valide juste l'approche matricielle et le calcul de  $\varepsilon^{-1}$ . Cependant, cela ne valide en aucun cas la robustesse de la méthode pour la mesure de tous types d'échantillons. En effet, la matrice  $\varepsilon$  reflète les caractéristiques de l'échantillon de référence mais pas celles d'échantillons différents en termes :

- d'auto-atténuation due à l'uranium (aux teneurs élevées) : effet à basse énergie sur le spectre, impact sur la matrice A dans la zone U et Ra,
- d'hétérogénéité de l'échantillon : effet à basse énergie sur le spectre, impact sur la matrice A dans les zones U, Ra et Rn,
- de taille de l'échantillon (notamment sa hauteur) : effet sur tout le spectre, impact sur toute la matrice  $\varepsilon$ ,
- de minéralogie : effet à basse énergie sur le spectre, impact sur la matrice A dans la zone U et Ra,
- de densité : effet sur tout le spectre, impact sur toute la matrice  $\varepsilon$ .

Une étude doit donc être menée sur la robustesse de la méthode vis-à-vis des variations de ces paramètres.

### III.3.3.2 Simplification du système d'équations

Afin d'étudier plus simplement les différents phénomènes physiques pouvant influencer sur la matrice  $\varepsilon$ , nous cherchons dans un premier temps à la simplifier sur la base d'hypothèses réalistes.

Le tableau suivant représente la contribution de chaque groupe de nucléides dans chaque zone énergétique pour l'échantillon type.

**Tableau 29 : Contribution de chaque groupe de nucléides dans chaque zone énergétique de l'échantillon type**

| Matrice %                        | Groupe U | Groupe Ra | Groupe Rn | Groupe K | Groupe Th |
|----------------------------------|----------|-----------|-----------|----------|-----------|
| <b>Zone U<br/>50 - 110 keV</b>   | 32.53 %  | 2.59 %    | 63.86 %   | 0.06 %   | 0.95 %    |
| <b>Zone Ra<br/>150-230 keV</b>   | 11.56 %  | 8.68 %    | 78.84 %   | 0.17 %   | 0.76 %    |
| <b>Zone Rn<br/>560-660 keV</b>   | 0.42 %   | 0.00 %    | 98.85 %   | 0.15 %   | 0.57 %    |
| <b>Zone K<br/>1400-1550 keV</b>  | 0.36 %   | 0.00 %    | 92.88 %   | 6.44 %   | 0.32 %    |
| <b>Zone Th<br/>2560-2760 keV</b> | 0.00 %   | 0.00 %    | 24.72 %   | 0.00 %   | 75.28 %   |

On peut remarquer plusieurs phénomènes et faire en conséquence des hypothèses pour simplifier la matrice :

- le groupe de l'uranium influence seulement les zones U et Ra du spectre gamma,
- le groupe du radium influence seulement les zones U et Ra. Comme la contribution du groupe Ra dans la zone U (2.59 %) est faible par rapport à la contribution du groupe Rn (63.86 %) dans cette même zone, le groupe Ra est incorporé dans le groupe Rn, en considérant qu'il y a équilibre entre le radium et le radon. On montrera dans ce document qu'un déséquilibre potentiel Ra/Rn en fin de chaîne de l'uranium influence peu les teneurs en uranium mesurées,



- le groupe du thorium influence essentiellement la zone Th pour la teneur en thorium de 15 ppm et sa contribution dans les autres zones peut être négligée jusqu'à environ 100 ppm (dans ce dernier cas, la contribution du groupe Th dans la zone uranium est de l'ordre de 10 %),
- le groupe du potassium influence presque exclusivement la zone K.

On peut dès lors simplifier la matrice normalisée comme suit :

**Tableau 30 : Simplification des contributions de chaque groupe de nucléides dans chaque zone énergétique**

| Matrice %                        | Groupe U | Groupe Rn | Groupe K | Groupe Th |
|----------------------------------|----------|-----------|----------|-----------|
| <b>Zone U<br/>50 - 110 keV</b>   | 32.53 %  | 66.46 %   | 0.06 %   | 0.95 %    |
| <b>Zone Rn<br/>560-660 keV</b>   | 0.42 %   | 98.85 %   | 0.15 %   | 0.57 %    |
| <b>Zone K<br/>1400-1550 keV</b>  | 0.36 %   | 92.88 %   | 6.44 %   | 0.32 %    |
| <b>Zone Th<br/>2560-2760 keV</b> | 0.00 %   | 24.72 %   | 0.00 %   | 75.28 %   |

Si en outre on s'affranchit de l'objectif de déterminer la teneur en potassium et en thorium, (a) peut se simplifier comme suit en négligeant les contributions de ces derniers dans les zones U et Rn :

$$(b) \quad \begin{cases} C_U = a1 \times A(U) + a3 \times A(Rn) \\ C_{Rn} = c3 \times A(Rn) \end{cases}$$

La matrice  $\mathcal{E}$  devient une matrice 2x2 :

**Tableau 31 : Matrice  $\mathcal{E}$  simplifiée avec deux groupes « U » et « Rn » et sa matrice inverse  $\mathcal{E}^{-1}$  (coefficients sans dimension)**

| Matrice $\mathcal{E}$          | Groupe U              | Groupe Rn             | Matrice $\mathcal{E}^{-1}$     | Groupe U               | Groupe Rn           |
|--------------------------------|-----------------------|-----------------------|--------------------------------|------------------------|---------------------|
| <b>Zone U<br/>50 - 110 keV</b> | $2.13 \times 10^{-2}$ | $4.35 \times 10^{-2}$ | <b>Zone U<br/>50 - 110 keV</b> | $4.73 \times 10^1$     | $-8.10 \times 10^1$ |
| <b>Zone Rn<br/>560-660 keV</b> | $1.09 \times 10^{-4}$ | $2.54 \times 10^{-2}$ | <b>Zone Rn<br/>560-660 keV</b> | $-2.02 \times 10^{-1}$ | $3.97 \times 10^1$  |

La matrice  $\mathcal{E}$  correspond donc à deux zones énergétiques du spectre :

- la zone U entre 50 keV et 110 keV afin d'observer la contribution du « groupe U », principalement due aux raies X de fluorescence à 95 et 98 keV et à l'émission gamma à 92 keV du  $^{234}\text{Th}$ ,
- la zone Rn entre 560 keV et 660 keV afin d'observer la contribution du « groupe Rn » majoritairement composée de la raie à 609 keV issue du  $^{214}\text{Bi}$ .

De ce système à 2 équations, on peut extraire le ratio du nombre de coups entre la zone U et la zone Rn :

$$\frac{C_U}{C_{Rn}} = \frac{a1 \times A(U) + a3 \times A(Rn)}{c3 \times A(Rn)} = \frac{a1 \times A(U)}{c3 \times A(Rn)} + \frac{a3}{c3}$$

Le ratio entre le nombre de coups de la zone uranium et les nombres de coups dans la zone radon est ainsi une fonction linéaire du déséquilibre entre le groupe uranium et le groupe radon :

$$\frac{C_U}{C_{Rn}} = \alpha \times \frac{A(^{238}_{92}U)}{A(^{214}_{83}Bi)} + \beta$$

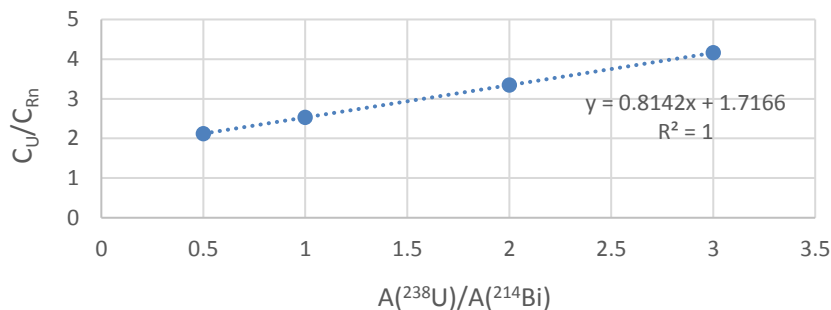
Ainsi, on peut obtenir le déséquilibre à partir du ratio  $\frac{C_U}{C_{Rn}}$  selon l'équation suivante :

$$\frac{A(^{238}_{92}U)}{A(^{214}_{83}Bi)} = \frac{C_U - \beta}{\alpha} \quad (\text{Eq. 3.1})$$

**Remarque :** Par simplicité didactique on préfère travailler avec les équations (b) et les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  qu'avec la matrice  $\mathcal{E}$ . En effet, il est plus facile d'illustrer les variations des coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  en fonction de différents paramètres (hauteur de remplissage, densité, teneur...) que la variation de la matrice vis-à-vis de ces mêmes paramètres. Néanmoins, les deux méthodes (matricielle ou analytique) sont équivalentes.

Afin de calculer  $\alpha$  et  $\beta$  par simulation, il a été décidé de simuler seulement le groupe U, Rn et Ra car les contributions des groupes K et Th sont très faibles dans les zones U et Rn. Cette simplification permet d'économiser un temps de calcul significatif.

Différents déséquilibres  $\frac{A(^{238}_{92}U)}{A(^{214}_{83}Bi)}$  ont été implémentés au sein de l'échantillon type. On observe bien que le ratio  $\frac{C_U}{C_{Rn}}$  évolue linéairement avec le déséquilibre  $\frac{A(^{238}_{92}U)}{A(^{214}_{83}Bi)}$  (Figure 96). Une régression linéaire sur cette évolution permet d'obtenir  $\alpha = 0.8142$  et  $\beta = 1.7166$ . On note que dans le cas où les 5 groupes de nucléides sont implémentés dans la simulation,  $\alpha = 0.8183$  et  $\beta = 1.7327$ , ce qui confirme qu'il n'est pas indispensable de simuler les groupes K et Th.



**Figure 96 : Evolution du ratio  $C_U/C_{Rn}$  en fonction du déséquilibre entre  $^{238}U$  et  $^{214}Bi$**

La dernière étape consiste à déterminer la teneur en uranium. Connaissant le déséquilibre  $\frac{A(^{238}_{92}U)}{A(^{214}_{83}Bi)}$ , l'activité de  $^{238}U$  peut être déduite de celle du  $^{214}Bi$ , facilement mesurable grâce à son émission gamma à 609 keV en utilisant la formule usuelle de spectrométrie gamma :

$$A(^{214}_{83}Bi) = \frac{S_n(609 \text{ keV})}{\text{Eff}_{609\text{keV}} \times I_{609\text{keV}}(^{214}_{83}Bi) \times Tc}$$

Avec :

- $S_n(609 \text{ keV})$  : nombre de coups dans la raie à 609 keV lors de la mesure de l'échantillon,
- $\text{Eff}_{609\text{keV}}$  : efficacité du détecteur à 609 keV (sans dimension : nombre de coups dans le pic à 609 keV par photon gamma de 609 keV émis dans l'échantillon), calculée avec MCNP ou ISOCS,
- $I_{609\text{keV}}(^{214}_{83}Bi)$  : intensité d'émission du  $^{214}Bi$  à 609 keV (nombre de photons émis par désintégration). Cette intensité est de 45.49 % selon la bibliothèque LARA,
- $Tc$  : temps de comptage (en secondes) actif (corrigé du temps mort).

On en déduit donc l'activité de l'uranium grâce à l'équation (Eq. 3.1) :

$$A(^{238}_{92}\text{U}) = A(^{214}_{83}\text{Bi}) \times \frac{C_U - \beta}{C_{Rn} \alpha}$$

Puis on obtient la teneur en uranium recherchée  $Cm_U$  (en ppm<sub>U</sub>) par la relation suivante :

$$Cm_U = \frac{1.0072 \times 10^6 \times M(^{238}_{92}\text{U}) \times T_{1/2}(^{238}_{92}\text{U}) \times A(^{238}_{92}\text{U})}{Na \times \ln(2) \times M_{ech}}$$

Avec :

- 1.0072 : ratio massique U/<sup>238</sup>U dans l'uranium naturel,
- Na : nombre d'Avogadro (6,022 x 10<sup>23</sup> mol<sup>-1</sup>),
- Cm<sub>U</sub> : teneur en uranium (en ppm<sub>U</sub>, c'est-à-dire en milligramme d'uranium par kilogramme d'échantillon, d'où le facteur de conversion 10<sup>6</sup> dans l'équation),
- M (<sup>238</sup><sub>92</sub>U) : masse molaire de l'<sup>238</sup>U (238,0507 g.mol<sup>-1</sup>),
- T<sub>1/2</sub>(<sup>238</sup><sub>92</sub>U) : temps de demi-vie (période radioactive) de l'<sup>238</sup>U (4.468x10<sup>9</sup> ans),
- M<sub>ech</sub> : masse de l'échantillon (en grammes).

On déduit ainsi Cm<sub>U</sub> en combinant les deux équations précédentes :

$$Cm_U = \frac{1.0072 \times 10^6 \times M(^{238}_{92}\text{U}) \times T_{1/2}(^{238}_{92}\text{U})}{\ln(2) \times Na \times M_{ech}} \times A(^{214}_{83}\text{Bi}) \times \frac{C_U - \beta}{\alpha}$$

donc

$$Cm_U = \frac{1.0072 \times 10^6 \times M(^{238}_{92}\text{U}) \times T_{1/2}(^{238}_{92}\text{U})}{\ln(2) \times Na \times M_{ech}} \times \frac{S_n(609 \text{ keV})}{Eff_{609\text{keV}} \times I_{609\text{keV}}(^{214}_{83}\text{Bi}) \times Tc} \times \frac{C_U - \beta}{\alpha}$$

Pour simplifier, on définit le coefficient d'étalonnage suivant :

$$CE_{609} = \frac{Eff_{609\text{keV}} \times I_{609\text{keV}}(^{214}_{83}\text{Bi}) \times Na \times \ln(2)}{1.0072 \times 10^6 \times M(^{238}_{92}\text{U}) \times T_{1/2}(^{238}_{92}\text{U})}$$

Et on obtient alors :

$$Cm_U (BE) = \frac{S_n(609 \text{ keV})}{CE_{609} \times Tc \times M_{ech}} \times \frac{C_U - \beta}{\alpha} \quad (\text{Eq. 3.2})$$

Avec Cm<sub>U</sub>(BE), la teneur en uranium calculée grâce à la méthode par bandes d'énergie (BE).

En résumé, une fois les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  mesurés expérimentalement ou obtenus par simulation, le déséquilibre  $\frac{A(^{238}_{92}\text{U})}{A(^{214}_{83}\text{Bi})}$  d'un échantillon de minerai d'uranium peut être calculé grâce à l'équation (Eq. 3.1). En combinant ce déséquilibre avec la mesure de l'activité massique du <sup>214</sup>Bi, la teneur en uranium de l'échantillon est calculée par l'équation (Eq. 3.2). Cette équation, liant la teneur en uranium de l'échantillon au ratio  $\frac{C_U}{C_{Rn}}$  des zones en énergie du spectre NaI associées respectivement à l'uranium et au groupe du

radon, dépend des coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  utilisés, qui sont eux-mêmes influencés par différents phénomènes physiques tels que la densité, la hauteur de l'échantillon, son hétérogénéité et sa teneur en uranium.

### III.3.4 Etude paramétrique de sensibilité des coefficients $\alpha$ et $\beta$

On considère le coefficient d'étalonnage  $CE_{609}$  connu pour chaque échantillon. En effet, comme démontré dans le chapitre précédent relatif à la spectrométrie gamma haute résolution, les effets de la minéralogie et de l'auto-atténuation sont faibles à forte énergie et  $CE_{609}$  dépend essentiellement de la hauteur et de la densité de l'échantillon.  $CE_{609}$  peut donc être obtenu par simulation MCNP ou avec le logiciel ISOCS et seuls les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  vont impacter la mesure de la teneur en uranium (Eq. 3.2). Cette partie est consacrée à une étude paramétrique visant à quantifier l'erreur commise sur la teneur en uranium si on considère les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  constants alors qu'en réalité ils varient avec les caractéristiques de chaque échantillon. Pour ce faire, les phénomènes physiques étudiés pouvant influencer la valeur de ces coefficients sont :

- la présence d'un déséquilibre Ra/Rn,
- l'auto-atténuation due à l'uranium,
- la hauteur de remplissage de l'échantillon,
- la densité de l'échantillon,
- la minéralogie de l'échantillon,
- l'hétérogénéité de l'échantillon.

Les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  ont donc été calculés en faisant varier ces paramètres. Le facteur  $\frac{A(^{238}_{92}\text{U})}{A(^{214}_{83}\text{Bi})} = \frac{C_U - \beta}{\alpha}$  est aussi calculé afin de quantifier l'écart sur la teneur en uranium si l'on considère  $\alpha$  et  $\beta$  constants et égaux à ceux calculés auparavant pour l'échantillon type ( $\alpha = 0.8142$  et  $\beta = 1.7166$ ).

#### III.3.4.1 Auto-atténuation

Afin d'analyser l'effet dû à l'auto-atténuation gamma par l'uranium, il a été simulé 13 échantillons de teneur en uranium croissante : 100, 1 000, 10 000, 20 000, 30 000, (...), 50 000, (...), 90 000 et 100 000 ppmU. Chacun de ces échantillons homogènes possède une hauteur de 5 cm, une densité de 1.3 et une minéralogie  $\text{SiO}_2$  comme l'échantillon type. Quelques spectres issus de ces différents échantillons sont présentés sur la Figure 97.

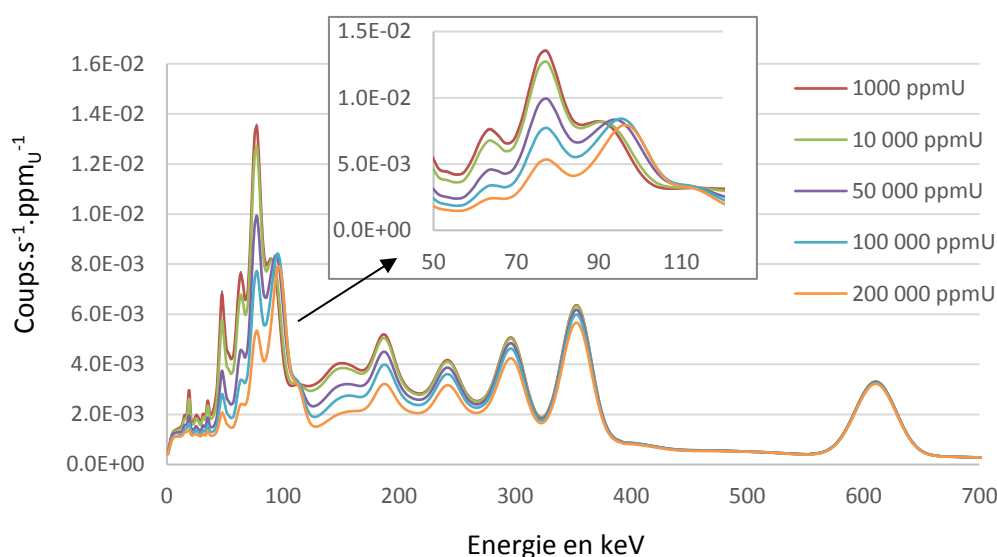


Figure 97 : Spectre NaI de différentes teneurs en uranium normalisées à cette même teneur

Les différents coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  calculés sont représentés dans le Tableau 32. Le ratio  $\frac{A(^{238}_{92}\text{U})}{A(^{214}_{83}\text{Bi})}$  permet d'observer l'écart sur la teneur en uranium (voir (Eq. 3.2)) dans le cas où les valeurs de  $\alpha$  et  $\beta$  seraient fixes et égales à celles de l'échantillon type.

**Tableau 32 : Effet de la teneur en uranium sur les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  et erreur sur le déséquilibre (donc la teneur en uranium mesurée) dans le cas d'une interprétation avec  $\alpha$  et  $\beta$  de l'échantillon type.**

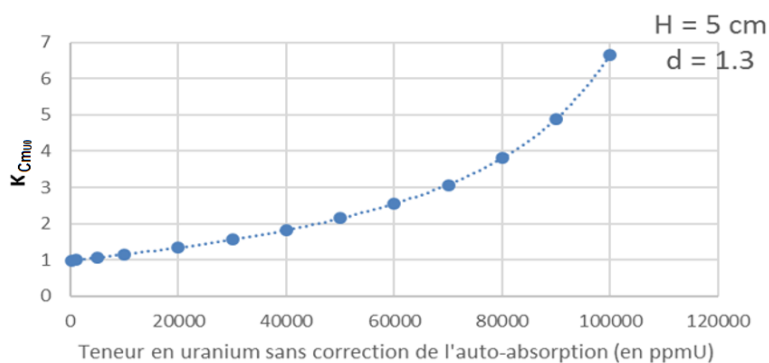
| Teneur de l'échantillon (en ppm <sub>U</sub> ) | $\alpha (= \frac{a_1}{c_3})$ | $\beta (= \frac{a_3}{c_3})$ | $\frac{A(^{238}_{92}\text{U})}{A(^{214}_{83}\text{Bi})} = \frac{C_U - \beta}{C_{Rn} \alpha}$ |
|--|------------------------------|-----------------------------|--|
| 100  | 0.8208                       | 1.7219                      | 1.01   |
| 1 000  | 0.8142                       | 1.7166                      | 1.00   |
| 5 000  | 0.7867                       | 1.6947                      | 0.94   |
| 10 000   | 0.7551                       | 1.6693                      | 0.87   |
| 20 000   | 0.7006                       | 1.6234                      | 0.75   |
| 30 000   | 0.6551                       | 1.5835                      | 0.64   |
| 40 000   | 0.6158                       | 1.5477                      | 0.55   |
| 50 000   | 0.5817                       | 1.5137                      | 0.47   |
| 60 000   | 0.5518                       | 1.4843                      | 0.39   |
| 70 000   | 0.5253                       | 1.4564                      | 0.33   |
| 80 000   | 0.5012                       | 1.4293                      | 0.26   |
| 90 000   | 0.4795                       | 1.4035                      | 0.20   |
| 100 000  | 0.4596                       | 1.3792                      | 0.15   |

Les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  sont décroissants lorsque la teneur en uranium augmente à cause du phénomène d'auto-atténuation à basse énergie (zone U de 50 à 110 keV) qui affecte les coefficients  $a_1$  et  $a_3$  représentant respectivement les contributions des groupes U et Rn dans cette zone U ( $c_3$  représentant la contribution du groupe Rn à 609 keV). On remarque que la différence est très faible entre 100 ppm<sub>U</sub> et 1 000 ppm<sub>U</sub>, l'effet d'auto-atténuation peut donc être considéré comme négligeable jusqu'à 1 000 ppm<sub>U</sub>.

Au-delà, pour corriger l'effet d'auto-atténuation il est envisageable d'appliquer un facteur correctif sur la teneur en uranium calculée, qui n'est autre que l'inverse des coefficients de la dernière colonne du Tableau 32. Ce facteur, noté  $K_{CmU0}$ , relie la teneur de l'échantillon corrigé de l'auto-atténuation à celle calculée avec les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  de l'échantillon type de 1 000 ppm<sub>U</sub>, notée  $Cm_{U0}$ , par la relation suivante :

$$Cm_U = Cm_{U0} \times K_{CmU0}$$

La variation de ce coefficient en fonction de la teneur en uranium est représentée sur le graphique suivant pour un échantillon de hauteur 5 cm et de densité 1.3 (échantillon type).



**Figure 98 : Variation du coefficient correctif  $K_{CmU0}$  en fonction de la teneur en uranium calculée avec les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  de l'échantillon type de 1 000 ppm<sub>U</sub>.**

**Remarque :** Les échantillons de très forte teneur fournis par ORANO Mining ont une hauteur de remplissage proche de 5 cm et une densité voisine de 1.3 (échantillon type). On pourra donc utiliser en première approximation le facteur correctif  $K_{CmU0}$  calculé précédemment sur un échantillon de 5 cm de hauteur et de densité 1.3 (Figure 98). Néanmoins, le facteur  $K_{CmU0}$  varie fortement en fonction de la hauteur et de la densité à forte teneur, par exemple :

- $K_{CmU0}(100\ 000\ ppm_U) = 7$  pour une hauteur de 5 cm, une densité de 1.3,
- $K_{CmU0}(100\ 000\ ppm_U) = 210$  pour une hauteur de 9 cm, une densité de 1.5.

Il est donc nécessaire de calculer plus finement le facteur correctif  $K_{CmU0}$  dans le cas d'une forte variabilité géométrique des échantillons (densité et hauteur). Cette étude est décrite en annexes A.9.

Le graphique suivant représente pour une densité fixe de 1.3 et pour 3 hauteurs différentes (1 cm, 5 cm et 9 cm) la valeur du coefficient  $K_{CmU0}$  en fonction de la teneur  $C_{mU0}$ .

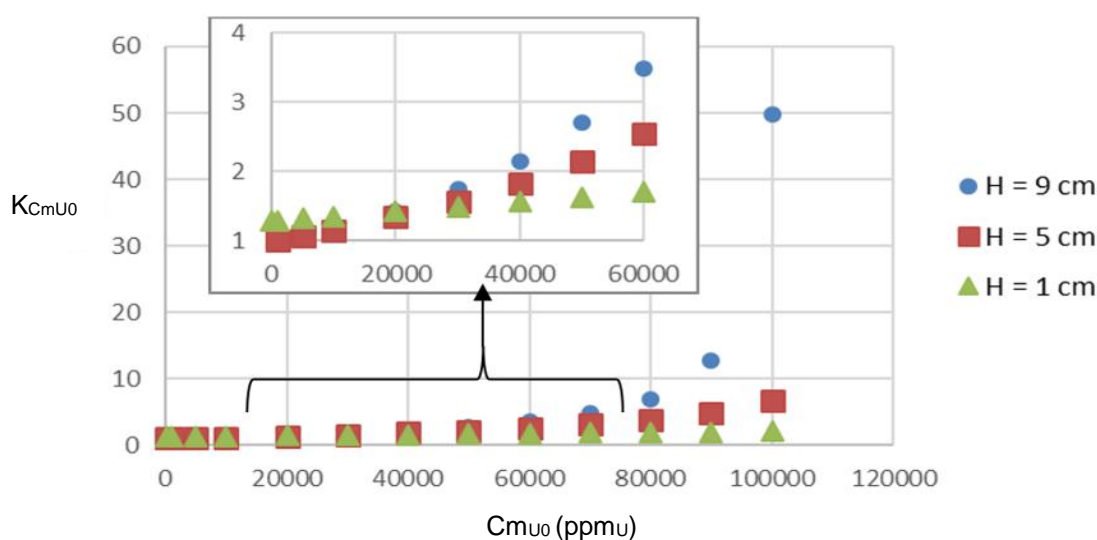


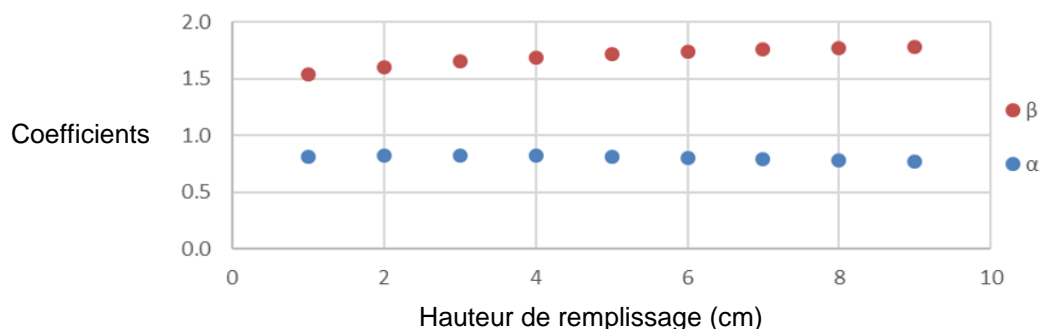
Figure 99 : Coefficient correctif  $K_{CmU0}$  en fonction de trois hauteurs de remplissage : 1 cm, 5 cm et 9 cm.

### III.3.4.2 Hauteur de remplissage

Afin d'analyser cet effet, il a été simulé 9 hauteurs de remplissage de 1 à 9 cm pour un échantillon homogène, de teneur 1 000 ppm<sub>U</sub>, de densité 1.3 et de minéralogie SiO<sub>2</sub> (échantillon de référence). Les résultats sont présentés dans le tableau suivant.

Tableau 33 : Effet de la hauteur de remplissage sur les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  et erreur sur le déséquilibre (donc la teneur en uranium mesurée) dans le cas d'une interprétation avec  $\alpha$  et  $\beta$  de l'échantillon type.

| Hauteur de remplissage de l'échantillon (cm) | $\alpha$ | $\beta$ | $\frac{A(^{238}_{92}U)}{A(^{214}_{83}Bi)} = \frac{C_U - \beta}{\alpha}$ |
|--|----------|---------|---|
| 1  | 0.8128   | 1.5326  | 0.77  |
| 2  | 0.8265   | 1.6011  | 0.87  |
| 3  | 0.8276   | 1.6515  | 0.94  |
| 4  | 0.8221   | 1.6879  | 0.97  |
| 5  | 0.8142   | 1.7166  | 1.00  |
| 6  | 0.8038   | 1.7363  | 1.01  |
| 7  | 0.7937   | 1.7532  | 1.02  |
| 8  | 0.7837   | 1.7657  | 1.02  |
| 9  | 0.7741   | 1.7739  | 1.02  |

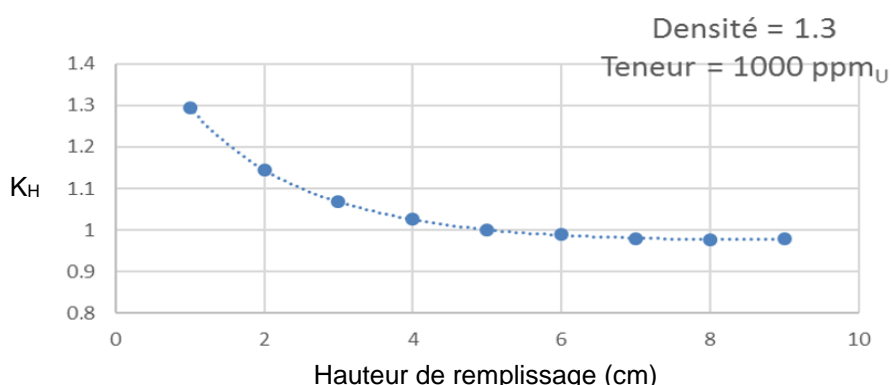


**Figure 100 : Effet de la hauteur de remplissage sur les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$ .**

On constate une sous-estimation du déséquilibre allant jusqu'à 23 % (cas de hauteur 1 cm), mais il est envisageable d'appliquer un facteur correctif lié à la hauteur de remplissage de l'échantillon, qui n'est autre que l'inverse des coefficients de la dernière colonne du Tableau 33. Ce facteur, noté  $K_H$ , relie la teneur de l'échantillon de hauteur  $h$  à celle calculée avec les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  de l'échantillon type de hauteur 5 cm, notée  $Cm_{U0}$ , par la relation suivante :

$$Cm_U = Cm_{U0} \times K_H$$

La variation de ce coefficient en fonction de la hauteur de remplissage est représentée sur le graphique suivant.



**Figure 101 : Variation du coefficient correctif de la hauteur de remplissage de l'échantillon  $K_H$  en fonction de la hauteur de remplissage**

### III.3.4.3 Minéralogie

Afin d'analyser l'effet dû à la minéralogie de l'échantillon, il a été simulé 3 échantillons de minéralogie différentes (soufre,  $SiO_2$  et  $Na_2CO_3$ ) qui représentent la valeur minimale, maximale et moyenne du coefficient d'atténuation massique (voir Figure 45). Chacun de ces échantillons est homogène, possède une teneur de 1 000 ppm<sub>U</sub>, une densité de 1.3 et une hauteur de remplissage de 5 cm.

Les résultats sont présentés dans le tableau suivant.

**Tableau 34 : Effet de la minéralogie sur les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$**

| Minéralogie | $\alpha$      | $\beta$       | $\frac{A(^{238}_{92}U)}{A(^{214}_{83}Bi)} = \frac{C_U - \beta}{\alpha}$ |
|-------------|---------------|---------------|---|
| $Na_2CO_3$  | 0.8632        | 1.8004        | 1.15  |
| $SiO_2$     | <b>0.8142</b> | <b>1.7166</b> | <b>1</b>  |
| <b>S</b>    | 0.6781        | 1.4859        | 0.55  |

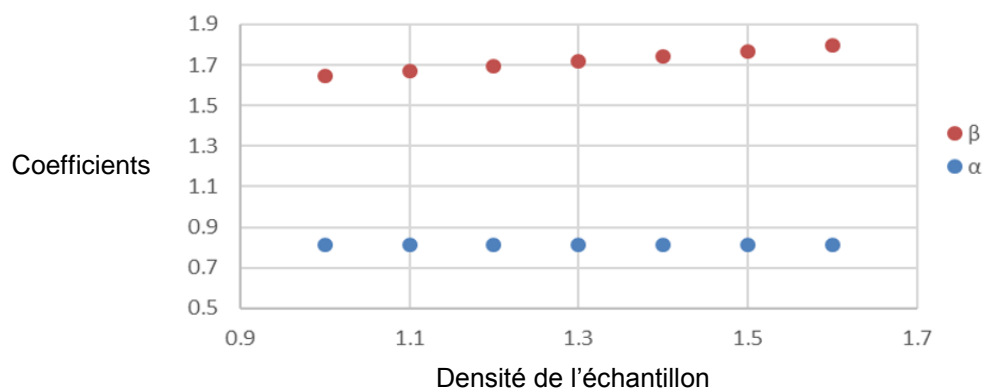
La variation de la minéralogie entraîne une variation significative des coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  et par suite de la teneur en uranium calculée. Ces variations sont dues à celles des coefficients d'atténuation associés à chaque minéralogie en dessous de 100 keV, qui influe significativement sur la zone U et non sur la zone Rn. Comme le soufre a le coefficient d'atténuation le plus grand,  $\alpha$  et  $\beta$  sont les plus petits et inversement pour le carbonate de sodium. La teneur en uranium estimée peut ainsi varier de +15 % pour un échantillon de  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  à - 45 % pour un échantillon de soufre. Néanmoins, un échantillon ne peut être seulement composé de soufre ou de carbonate de sodium, et les variations extrêmes présentées sur la minéralogie surestiment les fluctuations réelles pour des échantillons de minerai d'uranium. On estime à +/- 15 % l'incertitude sur la teneur en uranium due à la méconnaissance de la minéralogie réelle de l'échantillon (écarts entre  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  et  $\text{SiO}_2$  et entre  $\text{SiO}_2$  et gypse au vu de la Figure 45).

### III.3.4.4 Densité

Afin d'analyser l'effet dû à la densité, il a été simulé 7 échantillons de densité variable (de 1 à 1.6). Chacun de ces échantillons est homogène et possède une teneur de 1 000 ppm<sub>U</sub>, une minéralogie SiO<sub>2</sub> et une hauteur de remplissage de 5 cm (échantillon type). Les résultats sont présentés dans le Tableau 35 et la Figure 102.

**Tableau 35 : Effet de la densité sur les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  et erreur sur le déséquilibre (donc la teneur en uranium mesurée) dans le cas d'une interprétation avec  $\alpha$  et  $\beta$  de l'échantillon type.**

| Densité | $\alpha$      | $\beta$       | $\frac{A(^{238}_{92}\text{U})}{A(^{214}_{83}\text{Bi})} = \frac{C_U - \beta}{\alpha}$ |
|---------|---------------|---------------|---|
| 1       | 0.8114        | 1.6471        | 0.91  |
| 1.1     | 0.8125        | 1.6697        | 0.94  |
| 1.2     | 0.8136        | 1.6927        | 0.97  |
| 1.3     | <b>0.8142</b> | <b>1.7166</b> | 1.00  |
| 1.4     | 0.8146        | 1.7407        | 1.03  |
| 1.5     | 0.8151        | 1.7675        | 1.06  |
| 1.6     | 0.8152        | 1.7954        | 1.10  |



**Figure 102 : Effet de la densité sur les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$**

Bien que l'influence de la densité soit relativement limitée (environ +/- 10 %), ce paramètre étant facilement mesurable, une correction de la teneur en uranium peut être implémentée, tout comme pour la hauteur de l'échantillon. Un facteur correctif, noté  $K_D$ , relie la teneur de l'échantillon de densité  $d$  à celle calculée avec les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  de l'échantillon type de densité 1.3, notée  $C_{m_{U0}}$ , par la relation linéaire suivante :

$$C_{m_U} = C_{m_{U0}} \times K_D$$

La variation de ce coefficient (qui n'est autre que l'inverse des coefficients de la dernière colonne du Tableau 35) en fonction de la hauteur de remplissage est représentée sur le graphique suivant.



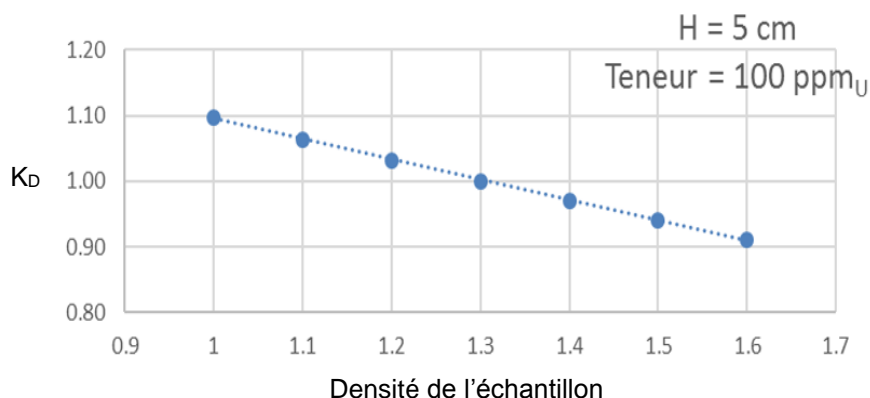


Figure 103 : Variation du coefficient correctif de la densité  $K_D$  en fonction de la densité

### III.3.4.5 Effet de l'hétérogénéité de l'échantillon

Le dernier effet pris en compte sur les deux coefficients est celui de l'hétérogénéité de l'échantillon. Pour la décrire, il a été décidé de simuler les mêmes hétérogénéités que celles du chapitre précédent :

- une pépite d' $UO_2$  (densité égale à 11) qui concentre tout l'uranium au centre de l'échantillon. Le reste de l'échantillon est composé de sable  $SiO_2$ . Si l'on considère dans le cas homogène (densité de 1.3 et hauteur de 5 cm) une teneur de 1 000 ppm<sub>U</sub>, alors le rayon de la pépite d' $UO_2$  qui permet de concentrer toute la masse en uranium (0.258 g<sub>U</sub>) est de 0.182 cm. Cette hétérogénéité est notée **H1**.

- une pépite d' $UO_2$  (densité égale à 11) de 0.1 cm de rayon, soit une masse d'uranium de 0.043 g<sub>U</sub>. Comme le rayon de la pépite est plus petit que dans le 1<sup>er</sup> cas d'hétérogénéité, le reste de l'uranium (0.215 g<sub>U</sub>) est dilué dans le sable  $SiO_2$ . Ainsi, si l'on considère dans le cas homogène une teneur en uranium de 1 000 ppm<sub>U</sub> pour une densité de 1.3 et une hauteur de remplissage de 5 cm, cela équivaut à concentrer 17 % de la masse de l'uranium total de l'échantillon dans la pépite et 83 % dans le sable  $SiO_2$ . Cette hétérogénéité est notée **H2**.

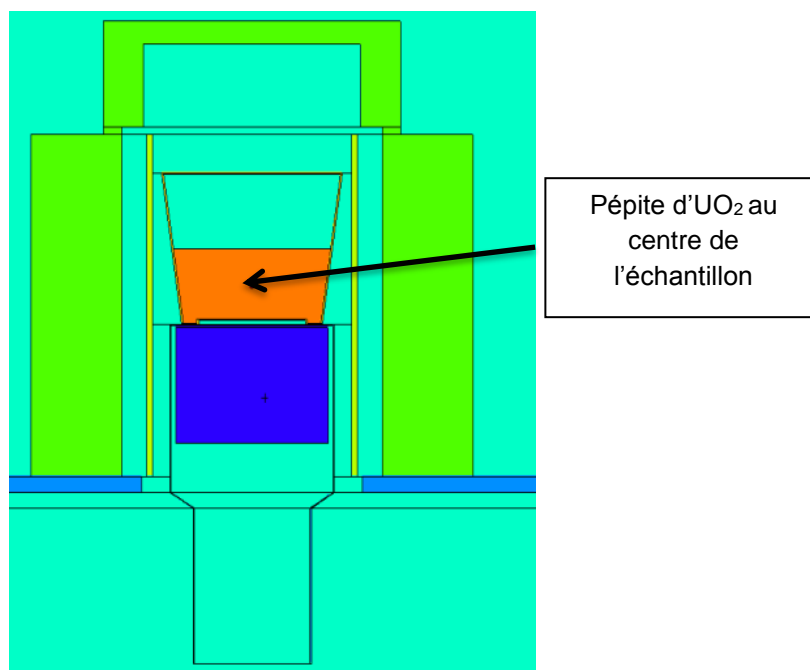
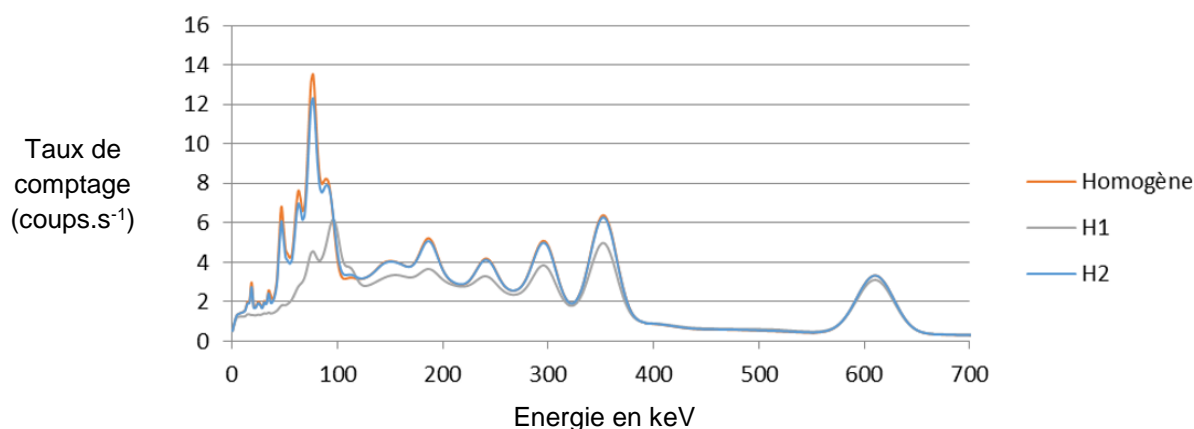


Figure 104 : Modèle MCNP des hétérogénéités H1 et H2. Dans le cas H1 tout l'uranium est dans la pépite. Dans le cas H2, l'uranium est réparti dans la pépite et dans le sable  $SiO_2$ .

Les spectres obtenus dans les cas homogène et hétérogènes (H1 et H2) sont représentés dans le graphique suivant. On remarque la forte influence de l'hétérogénéité H1 dans la zone uranium du spectre, ce qui a pour conséquence la modification des coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  représentés dans le tableau suivant.



**Figure 105 : Spectres MCNP représentant les hétérogénéités H1 et H2 ainsi que le cas de référence homogène**

**Tableau 36 : Effet de l'hétérogénéité de l'échantillon sur les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$**

| Densité  | $\alpha$      | $\beta$       | $\frac{[U]}{[Rn]} = \frac{C_U - \beta}{\alpha C_{Rn}}$ |
|----------|---------------|---------------|--|
| Homogène | <b>0.8142</b> | <b>1.7166</b> | 1.00   |
| H1       | 0.2427        | 1.2347        | -0.29  |
| H2       | 0.74          | 1.6614        | 0.84   |

L'hétérogénéité H2 de l'échantillon provoque une sous-estimation de 16 % du déséquilibre  $\frac{[U]}{[Rn]}$  et par suite de la teneur en uranium. L'hétérogénéité de type H1, conduit quant à elle à une valeur négative du déséquilibre (non physique).

La forme du spectre associé à l'hétérogénéité H1 est complètement différente de celle de l'échantillon de minerai d'uranium homogène. Ceci est causé par la fluorescence de l'uranium et la très forte absorption à basse énergie des émissions passives des différentes chaînes de filiation. On peut donc déduire directement de la visualisation d'un spectre si l'échantillon mesuré est potentiellement très hétérogène et en conséquence alerter d'un risque de sous-estimation de la teneur en uranium. Néanmoins, dans le cas de l'hétérogénéité H2, les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  sont moins impactés. En effet, dans ce cas, la majorité du signal provient de la région homogène de l'échantillon (simulé à 833 ppm<sub>U</sub>) et non pas de la pépité. On en conclut donc qu'une hétérogénéité de ce type n'est pas observable en lecture directe du spectre mais la sous-estimation de la teneur en uranium reste limitée (ici 16 %).

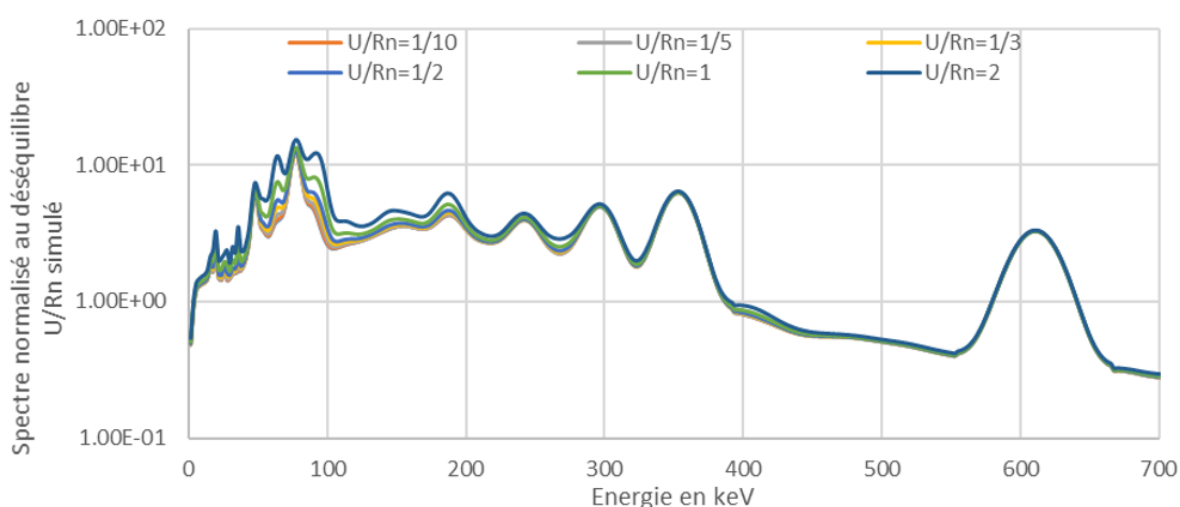
De plus, le positionnement de la pépité peut conduire à une sous-estimation du continuum si celle-ci est proche du détecteur, ou une surestimation du continuum si celle-ci est éloignée (étude à paraître). Cela influencera donc les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  et les teneurs pourront être sous-estimées ou surestimées plus largement.

**Remarque :** Un spectre issu d'une hétérogénéité forte (cas H1) est de la même forme qu'un spectre de forte teneur en uranium homogène (Figure 97). En effet, dans ces deux cas la fluorescence de l'uranium domine à 98 keV et seulement deux bosses sont visibles : les émissions du <sup>214</sup>Pb à 77 keV et la fluorescence X de l'uranium à 98.4 keV. En combinant cette information au taux de comptage total, on est donc capable de montrer qu'un échantillon présentant une telle forme de spectre à basse

énergie est soit de très forte teneur (fort taux de comptage), soit hétérogène (faible taux de comptage).

### III.3.4.6 Effet induit par la variation statistique du ratio $C_U/C_{Rn}$

Dans le cas d'études expérimentales, la mesure de la teneur en uranium du minerai passe par celle du ratio  $\frac{C_U}{C_{Rn}}$  reflétant le déséquilibre de l'échantillon par la relation  $\frac{A(^{238}_{92}U)}{A(^{214}_{83}Bi)} = \frac{C_U - \beta}{\alpha}$ . Ce paragraphe a pour objectif d'étudier la sensibilité du déséquilibre  $\frac{A(^{238}_{92}U)}{A(^{214}_{83}Bi)}$  aux fluctuations statistiques de comptage du ratio  $\frac{C_U}{C_{Rn}}$  et cela pour différents déséquilibres de l'échantillon. Ainsi, six déséquilibres ont été simulés (de U/Rn = 0.1 à 2) et les spectres issus de ces simulations sont représentés sur la Figure 106.



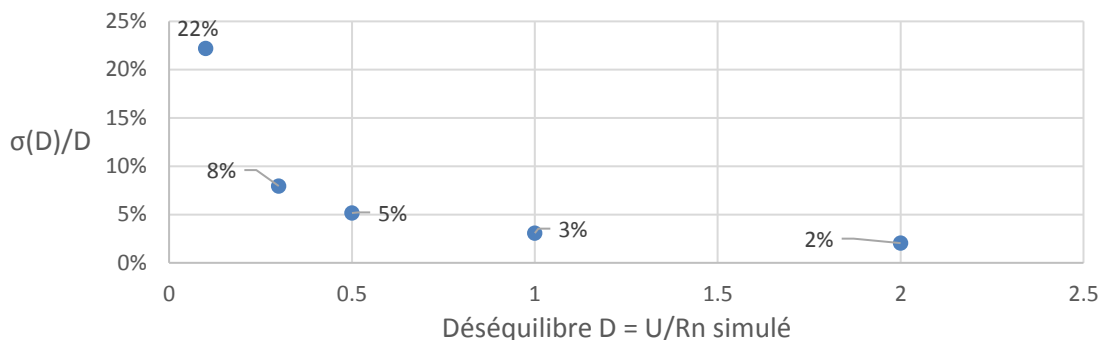
**Figure 106 : Spectres issus de l'échantillon type pour différents déséquilibres U/Rn normalisés à ce même déséquilibre.**

Notons que pour l'échantillon type, à l'équilibre U/Rn = 1, le taux de comptage enregistré dans la zone Rn est de  $81 \text{ s}^{-1}$  (voir matrice  $\epsilon$ ). Il faut alors environ **2 minutes** de mesure pour obtenir 10 000 coups dans cette zone, soit une incertitude statistique relative de 1 %, tandis qu'il ne faut que **48 secondes** pour obtenir 10 000 coups dans la zone uranium dont le taux de comptage est de  $206 \text{ s}^{-1}$ . On peut dès lors considérer une variation statistique du ratio  $\frac{C_U}{C_{Rn}}$  dans une plage de +/- 1 % pour cette étude, en considérant des mesures de quelques minutes sur chaque échantillon.

L'incertitude induite sur le ratio des activités  $\frac{A(^{238}_{92}U)}{A(^{214}_{83}Bi)}$  par les fluctuations statistiques de comptage du ratio  $\frac{C_U}{C_{Rn}}$  est calculée grâce à l'équation  $\frac{A(^{238}_{92}U)}{A(^{214}_{83}Bi)} = \frac{C_U - \beta}{\alpha}$ . Par souci de simplification rédactionnelle, on note D le déséquilibre  $\frac{A(^{238}_{92}U)}{A(^{214}_{83}Bi)}$ . Par propagation des incertitudes on obtient :

$$\frac{\sigma\left(\frac{A(^{238}_{92}U)}{A(^{214}_{83}Bi)}\right)}{\frac{A(^{238}_{92}U)}{A(^{214}_{83}Bi)}} = \frac{\sigma(D)}{D} = \frac{\sigma\left(\frac{C_U}{C_{Rn}}\right)}{\frac{C_U}{C_{Rn}} - \beta} = \frac{\sigma\left(\frac{C_U}{C_{Rn}}\right)}{\frac{C_U}{C_{Rn}} - \beta} = \frac{1\% \times \frac{C_U}{C_{Rn}}}{\frac{C_U}{C_{Rn}} - \beta}$$

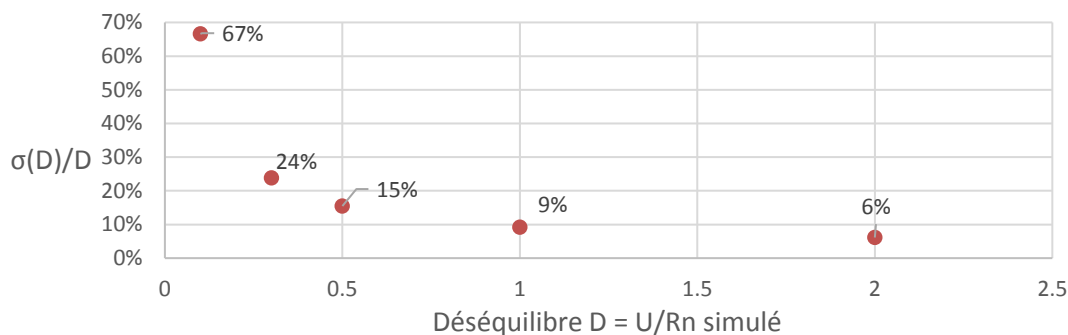
Le graphique suivant représente les fluctuations liées à la statistique de comptage pour différents déséquilibres simulés.



**Figure 107 : Incertitude relative induite sur le ratio des activités  $D = U/Rn$  pour une variation statistique du ratio  $C_U/C_{Rn}$  de +/- 1 %.**

Une incertitude statistique de 1 % sur le ratio  $\frac{C_U}{C_{Rn}}$  induit donc une incertitude de 22 % sur le ratio  $\frac{A(^{238}_{92}U)}{A(^{214}_{83}Bi)}$  pour un déséquilibre  $U/Rn = 0.1$ , mais seulement de 2 % pour un déséquilibre  $U/Rn = 2$ . L'effet commence à être significatif uniquement pour des déséquilibres  $U/Rn < 0.5$  pour lesquels l'incertitude relative dépasse alors 5 %.

**Remarque :** Il est à noter que cette étude est réalisée sur l'échantillon type de 1 000 ppmu. Lors de l'étude d'un échantillon de teneur plus faible, par exemple 100 ppmu, les temps de comptage nécessaires afin d'obtenir une fluctuation statistique du ratio  $\frac{C_U}{C_{Rn}}$  de +/- 1 % sont plus longs. Dans le cas d'un échantillon fortement déséquilibré de faible teneur, une mesure trop rapide pourrait donc entraîner de plus forts biais sur le déséquilibre  $\frac{A(^{238}_{92}U)}{A(^{214}_{83}Bi)}$  calculé. Le graphique suivant représente, à titre d'exemple, les différences relatives entre le déséquilibre calculé et le déséquilibre simulé dans le cas d'une fluctuation statistique du ratio  $\frac{C_U}{C_{Rn}}$  de +/- 3 %.



**Figure 108 : Incertitude relative induite sur le ratio des activités  $D = U/Rn$  pour une variation statistique du ratio  $C_U/C_{Rn}$  de +/- 3 %.**

Une fluctuation statistique du ratio  $\frac{C_U}{C_{Rn}}$  de +/- 3 % entraîne ainsi une incertitude de 67 % sur le ratio  $\frac{A(^{238}_{92}U)}{A(^{214}_{83}Bi)}$  pour un déséquilibre  $U/Rn = 0.1$ . Notons qu'un élargissement important de la zone radon, qui n'englobe actuellement que la raie à 609 keV du  $^{214}Bi$ , permettrait de réduire l'incertitude statistique relative sur le ratio  $\frac{C_U}{C_{Rn}}$  et de revenir à la valeur précédente de 1 %, par exemple avec une zone allant de 300 à 2000 keV (ceci nécessiterait de recalculer des coefficients  $\alpha$  et  $\beta$ ). Notons cependant que les fluctuations statistiques de comptage ne sont pas le seul phénomène à pouvoir affecter le ratio  $\frac{C_U}{C_{Rn}}$ . Des distorsions du spectre gamma dues aux variations de température (potentiellement de - 30°C à + 50°C sur les sites miniers d'ORANO) sont à prendre en compte, deux méthodes de compensation pouvant être implémentées :

- stabilisation du gain via l'électronique de comptage, méthode déjà mise en œuvre sur les détecteurs NaI 2"x2" de MIRION CANBERRA [57],
- calibration automatique des spectres gamma via des raies toujours présentes et facilement identifiables, cette méthode étant déjà utilisée au Laboratoire de Mesures Nucléaires dans le cadre d'autres applications avec des détecteurs NaI (elle serait à adapter aux spectres de minerai d'uranium).

## III.4 Etude expérimentale de la méthode par bandes d'énergie

### III.4.1 Sélection des 38 échantillons

ORANO Mining a mis à disposition du Laboratoire de Mesures Nucléaires 38 échantillons de teneur en uranium variable permettant de valider la méthode précédemment présentée. Ces échantillons sont concassés finement et disposés dans des conteneurs en PVC de mêmes dimensions que ceux simulés dans ce chapitre. Ces échantillons sont les mêmes que ceux étudiés dans le chapitre précédent (Tableau 16, § II.6.2.2).

Il est à noter que contrairement à ORANO Mining, la mesure des échantillons est réalisée au Laboratoire de Mesures Nucléaires sans résine. Un déséquilibre uranium-radon provenant de l'évaporation de ce dernier à travers le PVC est donc à prendre en compte. Ainsi, les déséquilibres U/Rn mesurés lors de l'étude expérimentale ne sont pas nécessairement égaux aux déséquilibres U/eRa donnés par ORANO Mining (voir Tableau 16, § II.6.2.2).

### III.4.2 Mesure de la teneur en uranium des 38 échantillons

Les mesures ont été réalisées sur trois jours pour les 38 échantillons. Le temps de comptage par échantillon fluctue suivant la teneur en uranium mais n'a pas été optimisé. Une optimisation du temps de comptage pour chaque échantillon est abordée dans le § III.5. Les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  sont ceux de l'échantillon type abordés dans le § III.3.4. Trois facteurs correctifs de la teneur  $K_D$ ,  $K_H$  et  $K_{CmU0}$  sont calculés pour chaque échantillon afin de corriger les effets dus à la densité et à la hauteur variables de ceux-ci et des effets d'auto-atténuation à haute teneur. Le Tableau 37 récapitule, pour les 38 échantillons étudiés, leur teneur en uranium  $Cm_U$  obtenue par mesure ICP-MS (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry) sur une partie d'environ 30 g de l'échantillon, la hauteur de remplissage et la densité, le nombre d'impulsions dans les zones U et Rn ainsi que le ratio correspondant, l'activité massique en  $^{214}\text{Bi}$  mesurée avec la raie à 609 keV, la teneur  $Cm_U(\text{BE})$  estimée avec la méthode des bandes d'énergie et la différence relative avec la teneur réelle de référence  $Cm_U$ . La teneur  $Cm_U(\text{BE})$  est calculée en fonction de la teneur mesurée grâce aux coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  de l'échantillon type, notée  $Cm_{U0}$  (hauteur de 5 cm, densité de 1.3 et 1000 ppm<sub>U</sub>), puis corrigée par les facteurs  $K_D$ ,  $K_H$  et  $K_{CmU0}$  par la relation suivante :

$$Cm_U(\text{BE}) = Cm_{U0} \times K_D \times K_H \times K_{CmU0}$$

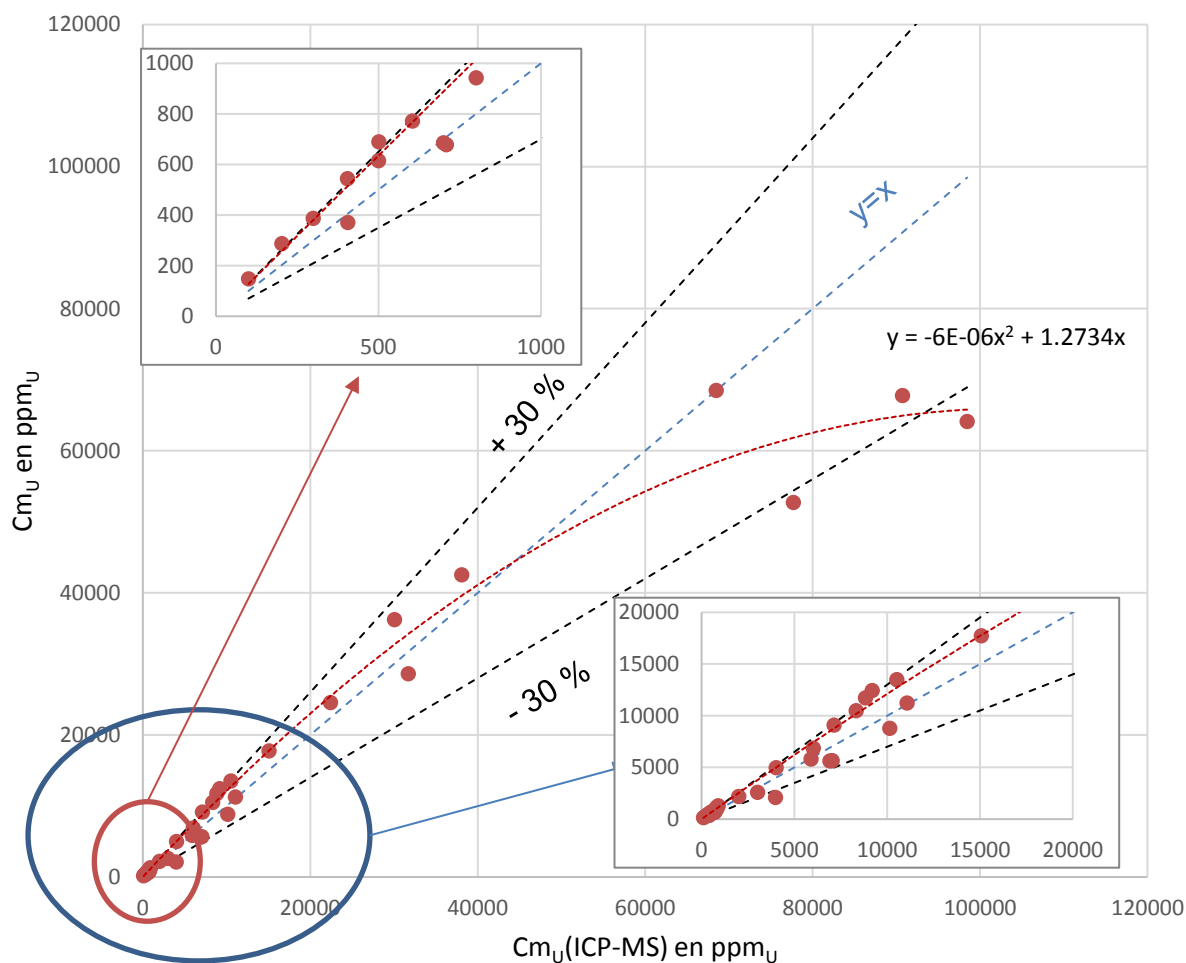
Dans le tableau suivant, les corrections liées à la géométrie de l'échantillon (hauteur et densité) sont regroupées en un seul et unique facteur  $K_{D,H} = K_D \times K_H$ .

**Remarque :** Cette relation fait l'hypothèse que les fluctuations des trois paramètres (hauteur, densité et teneur) induisent des effets indépendants entre eux vis-à-vis de la correction à réaliser. En réalité, cela reste vrai dans le cas où les variations de densité, hauteur et de teneur sont faibles entre tous les échantillons de l'étude. Par la suite, au § III.4.3, une étude multiparamétrique sera menée afin de trouver un seul et unique facteur correctif  $K$  permettant de rendre la méthode plus robuste aux différentes variations des caractéristiques de l'échantillon.

La Figure 109 représente les teneurs  $Cm_U(\text{BE})$  calculées en fonction des teneurs connues par ICP-MS.

Tableau 37 : Récapitulatif des résultats des 38 échantillons mesurés

| Cm <sub>U</sub> (ICP-MS)<br>(ppm <sub>U</sub> )<br>Référence | Hauteur<br>(cm) | Masse | Densité | Temps de<br>Comptage<br>(s) | Zone U<br>(Nombre de<br>coups) | Zone Rn<br>(Nombre de<br>coups) | Z <sub>U</sub> /Z <sub>Rn</sub> | A <sub>m</sub> ( <sup>214</sup> Bi)<br>(Bq.g <sup>-1</sup> ) | α      | β      | Cm <sub>U</sub> (BE)<br>(ppm <sub>U</sub> )<br>sans<br>correction | K <sub>H,D</sub> | K <sub>CmUO</sub> | Cm <sub>U</sub> (BE)<br>(ppm <sub>U</sub> ) | $\frac{Cm_U(BE) - Cm_U(réf)}{Cm_U(réf)}$ |
|--|-----------------|-------|---------|-----------------------------|--------------------------------|---------------------------------|---------------------------------|--|--------|--------|---|------------------|-------------------|---|--|
| 100  | 5.3             | 253   | 1.20    | 6242                        | 155072                         | 49925                           | 3.11                            | 86.45  | 0.8142 | 1.7166 | 148   | 1.02             | 0.99              | 148   | 48 %                                     |
| 203  | 4.2             | 188   | 1.17    | 4926                        | 198339                         | 63288                           | 3.13                            | 157.06   | 0.8142 | 1.7166 | 273   | 1.06             | 0.99              | 287   | 41 %                                     |
| 299  | 4.5             | 203   | 1.17    | 577                         | 45889                          | 17983                           | 2.55                            | 362.95   | 0.8142 | 1.7166 | 372   | 1.05             | 0.99              | 388   | 30 %                                     |
| 405  | 7.1             | 400   | 1.32    | 537                         | 77897                          | 28680                           | 2.72                            | 465.20   | 0.8142 | 1.7166 | 571   | 0.96             | 0.99              | 544   | 34 %                                     |
| 406  | 6.2             | 329   | 1.28    | 311                         | 27648                          | 10047                           | 2.75                            | 302.85   | 0.8142 | 1.7166 | 385   | 0.97             | 0.99              | 371   | -9 %                                     |
| 500  | 6.8             | 379   | 1.32    | 5401                        | 1110316                        | 460102                          | 2.41                            | 753.67   | 0.8142 | 1.7166 | 645   | 0.96             | 0.99              | 615   | 23 %                                     |
| 501  | 5.7             | 187   | 0.81    | 1557                        | 124260                         | 42142                           | 2.95                            | 405.67   | 0.8142 | 1.7166 | 614   | 1.13             | 0.99              | 690   | 38 %                                     |
| 605  | 3.5             | 174   | 1.34    | 414                         | 47595                          | 15522                           | 3.07                            | 443.89   | 0.8142 | 1.7166 | 736   | 1.05             | 1.00              | 772   | 28 %                                     |
| 700  | 4.7             | 220   | 1.20    | 3364                        | 398530                         | 139759                          | 2.85                            | 477.91   | 0.8142 | 1.7166 | 666   | 1.04             | 0.99              | 686   | -2 %                                     |
| 709  | 3.2             | 177   | 1.51    | 621                         | 45351                          | 7727                            | 5.87                            | 130.08   | 0.8142 | 1.7166 | 663   | 1.03             | 0.99              | 678   | -4 %                                     |
| 800  | 8.1             | 406   | 1.13    | 300                         | 78586                          | 29573                           | 2.66                            | 941.76   | 0.8142 | 1.7166 | 1088  | 1.04             | 1.00              | 1133  | 42 %                                     |
| 801  | 4.4             | 199   | 1.18    | 538                         | 66657                          | 19086                           | 3.49                            | 410.54   | 0.8142 | 1.7166 | 895   | 1.05             | 1.00              | 943   | 18 %                                     |
| 801  | 3.2             | 131   | 1.12    | 414                         | 51606                          | 16896                           | 3.05                            | 601.06   | 0.8142 | 1.7166 | 988   | 1.13             | 1.00              | 1115  | 39 %                                     |
| 899  | 8.5             | 419   | 1.10    | 478                         | 123131                         | 42196                           | 2.92                            | 833.48   | 0.8142 | 1.7166 | 1230  | 1.06             | 1.00              | 1313  | 46 %                                     |
| 2000   | 8.9             | 380   | 0.94    | 6103                        | 3716473                        | 1667750                         | 2.23                            | 3014.48  | 0.8142 | 1.7166 | 1895  | 1.14             | 1.02              | 2192  | 10 %                                     |
| 3007   | 4.2             | 260   | 1.62    | 147                         | 101165                         | 38168                           | 2.65                            | 2358.44  | 0.8142 | 1.7166 | 2705  | 0.94             | 1.03              | 2612  | -13 %                                    |
| 3894   | 5.8             | 378   | 1.60    | 698                         | 477131                         | 178773                          | 2.67                            | 2003.68  | 0.8142 | 1.7166 | 2344  | 0.88             | 1.02              | 2114  | -47 %                                    |
| 4024   | 2               | 100   | 1.44    | 118                         | 62400                          | 21750                           | 2.87                            | 2940.04  | 0.8142 | 1.7166 | 4161  | 1.14             | 1.05              | 4993  | 24 %                                     |
| 5895   | 7.5             | 250   | 0.77    | 105                         | 90008                          | 35476                           | 2.54                            | 4699.37  | 0.8142 | 1.7166 | 4736  | 1.15             | 1.06              | 5821  | -1 %                                     |
| 6024   | 6.4             | 300   | 1.13    | 71                          | 116060                         | 47567                           | 2.44                            | 6941.75  | 0.8142 | 1.7166 | 6167  | 1.02             | 1.09              | 6873  | 14 %                                     |
| 6916   | 5.5             | 253   | 1.14    | 216                         | 138299                         | 31922                           | 4.33                            | 1588.30  | 0.8142 | 1.7166 | 5103  | 1.03             | 1.07              | 5626  | -19 %                                    |
| 7038   | 4.6             | 246   | 1.38    | 207                         | 225382                         | 80590                           | 2.80                            | 4030.02  | 0.8142 | 1.7166 | 5346  | 0.99             | 1.07              | 5674  | -19 %                                    |
| 7134   | 6.4             | 300   | 1.13    | 86                          | 147821                         | 54523                           | 2.71                            | 6519.39  | 0.8142 | 1.7166 | 7964  | 1.02             | 1.12              | 9114  | 28 %                                     |
| 8332   | 4.5             | 184   | 1.06    | 126                         | 193579                         | 73072                           | 2.65                            | 7505.14  | 0.8142 | 1.7166 | 8596  | 1.08             | 1.13              | 10503                                       | 26 %                                     |
| 8832   | 1.2             | 40    | 1.00    | 256                         | 101691                         | 29259                           | 3.48                            | 3716.41  | 0.8142 | 1.7166 | 8029  | 1.31             | 1.12              | 11746                                       | 33 %                                     |
| 9187   | 8               | 386   | 1.09    | 98                          | 231620                         | 86084                           | 2.69                            | 8570.99  | 0.8142 | 1.7166 | 10253   | 1.05             | 1.15              | 12434                                       | 35 %                                     |
| 10136  | 3.7             | 209   | 1.51    | 71                          | 107574                         | 38082                           | 2.82                            | 5813.37  | 0.8142 | 1.7166 | 7913  | 1.00             | 1.12              | 8798  | -13 %                                    |
| 10525  | 5.5             | 300   | 1.36    | 140                         | 367848                         | 129879                          | 2.83                            | 8645.70  | 0.8142 | 1.7166 | 11847   | 0.96             | 1.18              | 13483                                       | 28 %                                     |
| 11076  | 2.1             | 89    | 1.22    | 130                         | 82051                          | 17872                           | 4.59                            | 2393.22  | 0.8142 | 1.7166 | 8449  | 1.18             | 1.12              | 11235                                       | 1 %                                      |
| 15066  | 5.5             | 260   | 1.18    | 83                          | 253549                         | 94498                           | 2.68                            | 12016.33   | 0.8142 | 1.7166 | 14264   | 1.02             | 1.22              | 17744                                       | 18 %                                     |
| 22416  | 5.7             | 300   | 1.30    | 54                          | 264932                         | 101715                          | 2.60                            | 17660.03   | 0.8142 | 1.7166 | 19262   | 0.98             | 1.30              | 24552                                       | 10 %                                     |
| 30083  | 4.2             | 216   | 1.35    | 46                          | 254634                         | 95216                           | 2.67                            | 21473.85   | 0.8142 | 1.7166 | 25258   | 1.01             | 1.41              | 36235                                       | 20 %                                     |
| 31696  | 5.2             | 276   | 1.34    | 27                          | 143339                         | 54794                           | 2.62                            | 19647.57   | 0.8142 | 1.7166 | 21702   | 0.98             | 1.35              | 28622                                       | -10 %                                    |
| 38112  | 4.5             | 254   | 1.46    | 40                          | 342476                         | 138018                          | 2.48                            | 31185.14   | 0.8142 | 1.7166 | 29293   | 0.97             | 1.50              | 42516                                       | 12 %                                     |
| 68512  | 4.3             | 225   | 1.37    | 34                          | 434835                         | 189280                          | 2.30                            | 54697.48   | 0.8142 | 1.7166 | 39012   | 1.00             | 1.75              | 68506                                       | 0 %                                      |
| 77713  | 5.5             | 295   | 1.33    | 42                          | 546873                         | 240604                          | 2.27                            | 49468.64   | 0.8142 | 1.7166 | 33800   | 0.97             | 1.60              | 52713                                       | -32 %                                    |
| 90747  | 4.9             | 243   | 1.26    | 25                          | 330172                         | 145183                          | 2.27                            | 56406.56   | 0.8142 | 1.7166 | 38628   | 1.01             | 1.74              | 67779                                       | -25 %                                    |
| 98457  | 4.5             | 240   | 1.38    | 17                          | 251833                         | 113460                          | 2.22                            | 61136.24   | 0.8142 | 1.7166 | 37767   | 0.99             | 1.71              | 64096                                       | -35 %                                    |
|  |                 |       |         |                             |                                |                                 |                                 |  |        |        |   |                  |                   | Ecart moyen                                 | 23.02 %                                  |



**Figure 109 :  $Cm_U(BE)$  mesurée avec la méthode par bandes d'énergie pour tous les échantillons en fonction de la teneur de référence (ICP-MS)**

On remarque des différences relativement importantes entre les teneurs  $Cm_U(BE)$  et les teneurs de référence (voir Tableau 37). Ces différences pourraient être dues aux trois causes principales suivantes :

- la contribution du signal de l'uranium dans la zone Uranium (50-110 keV) n'est pas optimisée car comprend les émissions du  $^{214}Pb$  à 77 keV (signal parasite),
- une surestimation systématique de l'émission du rayonnement gamma à 63 keV du  $^{234}Th$  malgré l'utilisation de la plus petite intensité d'émission (bibliothèque LARA, voir Figure 42).
- variations des coefficients correctifs non indépendants entre eux. En effet,  $K_{cmU0}$  est calculé pour une hauteur de remplissage fixe de 5 cm et une densité de 1.3. Cependant, on observe que ce coefficient varie en fonction de la hauteur et de la densité de l'échantillon. Une étude multiparamétrique doit donc être menée afin de diminuer les incertitudes sur ce facteur correctif.

Ces trois phénomènes, induisant des erreurs sur les teneurs calculées, nous ont poussé à optimiser la zone uranium sélectionnée dans le spectre afin de favoriser le signal de l'uranium. Cette optimisation est présentée dans la partie suivante.

### III.4.3 Optimisation de la zone uranium

Deux nouvelles zones ont été définies en plus de la zone « uranium » premièrement identifiée entre 50 keV et 110 keV, notée aussi zone « uranium 1 » :

- une zone « uranium 2 » entre 59 keV et 73 keV puis 87 keV et 110 keV afin de privilégier les émissions du  $^{234}\text{Th}$  à 63 keV et 92 keV (haut de la chaîne  $^{238}\text{U}$ , groupe U) et d'éviter la zone influencée par l'émission liée au  $^{214}\text{Pb}$  à 77 keV (bas de chaîne  $^{238}\text{U}$ , groupe Rn),
- une zone « uranium 3 » entre 87 keV et 110 keV afin de ne cibler que l'émission gamma à 92 keV du  $^{234}\text{Th}$ , qui semble être l'émission la mieux simulée des deux émissions de ce nucléide, ainsi que la raie X d'auto-fluorescence à 98.4 keV de l'uranium (voir § II.4.1).

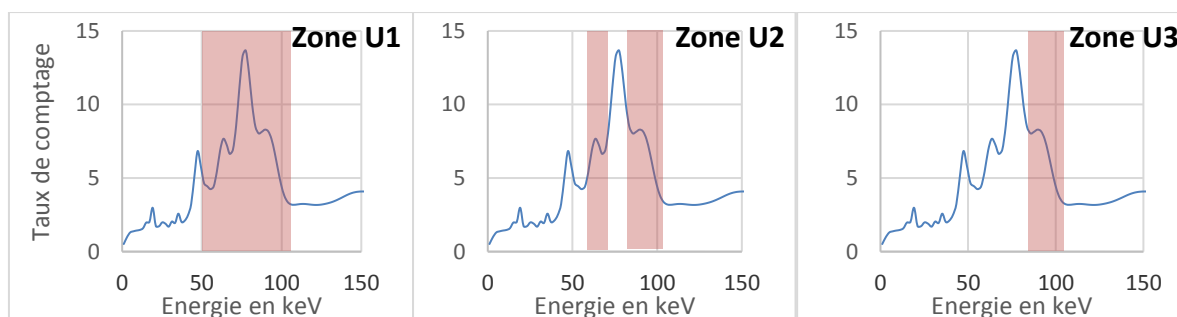


Figure 110 : Différentes zones « Uranium » sélectionnées pour l'étude par bandes d'énergie

Le tableau suivant récapitule la valeur des coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  pour chaque zone Uranium nouvellement définie. Ces valeurs sont calculés comme dans le III.3.3.2.

Tableau 38 : Valeurs des coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  pour la zone U1,U2 et U3

|          | Zone U1 | Zone U2 | Zone U3 |
|----------|---------|---------|---------|
| $\alpha$ | 0.8142  | 0.5661  | 0.3322  |
| $\beta$  | 1.7166  | 0.804   | 0.4866  |

**Remarque :** Le ratio  $\alpha/\beta$  augmente lorsque l'on affine la plage énergétique de la zone uranium. Au vu de la matrice  $\epsilon$  du Tableau 31, ce ratio est équivalent au ratio du signal de l'uranium sur le signal du groupe radon dans la zone uranium qui augmente logiquement lorsque l'on affine la plage énergétique de la zone uranium.

Afin de simplifier la méthode, un facteur correctif K, calculé en fonction de la densité, la hauteur de remplissage et la teneur en uranium, elle-même calculée avec les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  de l'échantillon type, a été utilisé par la suite (voir détails en annexe A.9). Ce coefficient permet de simplifier le calcul de la teneur en uranium avec prise en compte de la densité (d), de la hauteur de remplissage (H) et de la teneur calculée avec les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  de l'échantillon type ( $Cm_{U0}$ ) par la relation suivante :

$$Cm_U(BE) = Cm_{U0} \times K(d, H, Cm_{U0})$$

Ce coefficient a été calculé pour les zones U2 et U3 par analyse multiparamétrique grâce au logiciel GReMLin [58]. Ce logiciel est décrit en annexe A.7. Pour ce faire, 7 densités, 13 teneurs en uranium et 9 hauteurs de remplissage ont été simulées (les mêmes que celles de le § III.3.4) et ont permis de déterminer 819 valeurs de facteur correctif K en fonction des trois paramètres influents (hauteur, densité, teneur – voir annexe A.9).

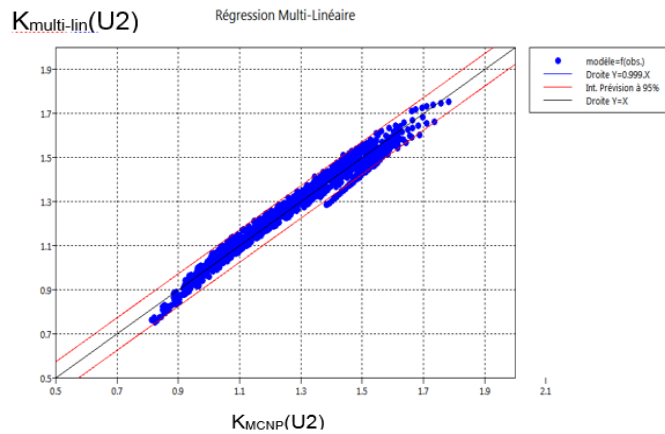
En posant d la densité de l'échantillon, h la hauteur de remplissage et  $Cm_{U0}$  la teneur mesurée avec les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  de l'échantillon type, on trouve un facteur correctif  $K_{U2}$  pour la zone U2 :

$$K_{U2}(d, h, Cm_{U0}) = a_0 + a_1 \times Cm_{U0} + a_2 \times d + a_3 \times h + a_4 \times d \times h + a_5 \times Cm_{U0} \times d \times h \\ + a_6 \times Cm_{U0}^3 + a_7 \times h^3$$



Avec :

- Nombre d'observations : **819**
- Degrés de liberté : **811**
- Ecart type résiduel : **0.0378**
- $a_0 = 1.8175$  (sans dimension)
- $a_1 = 8.3419E - 07 \text{ ppm}^{-1}$
- $a_2 = -2.5754E - 01$  (sans dimension)
- $a_3 = -6.1284E - 02 \text{ cm}^{-1}$
- $a_4 = -3.6683E - 02 \text{ cm}^{-1}$
- $a_5 = 5.7332E - 07 \text{ ppm}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$
- $a_6 = 3.7808E - 17 \text{ ppm}^{-3}$
- $a_7 = 6.0113E - 04 \text{ cm}^{-3}$



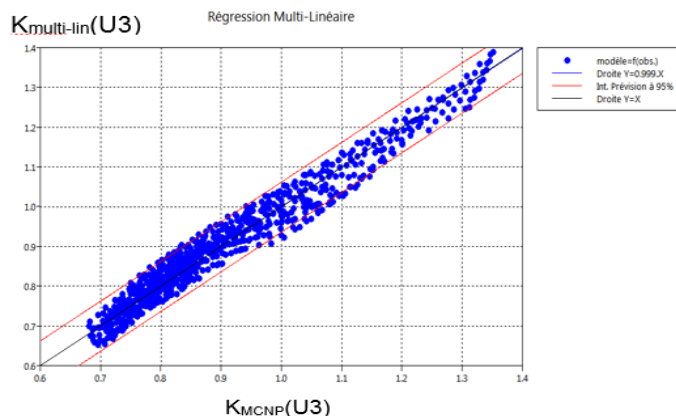
**Figure 111 : Facteur correctif  $K_{U2}$  obtenu avec la régression multi-linéaire en fonction du facteur correctif  $K$  calculé par simulation MCNP (référence)**

De la même manière pour la zone U3, on trouve un facteur correctif  $K_{U3}$  :

$$K_{U3}(d, h, Cm_{U0}) = a_0 + a_1 \times Cm_{U0} + a_2 \times d + a_3 \times h + a_4 \times d \times h + a_5 \times Cm_{U0} \times d \times h + a_6 \times Cm_{U0}^3 + a_7 \times h^3$$

Avec :

- Nombre d'observations : **819**
- Degrés de liberté : **811**
- Ecart type résiduel : **0.0322**
- $a_0 = 1.6894$  (sans dimension)
- $a_1 = -6.4818E - 06 \text{ ppm}^{-1}$
- $a_2 = -2.0609E - 01$  (sans dimension)
- $a_3 = -6.9441E - 02 \text{ cm}^{-1}$
- $a_4 = -2.4524E - 02 \text{ cm}^{-1}$
- $a_5 = 3.0149E - 07 \text{ ppm}^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$
- $a_6 = 2.6408E - 16 \text{ ppm}^{-3}$
- $a_7 = 5.3079E - 04 \text{ cm}^{-3}$



**Figure 112 : Facteur correctif  $K_{U3}$  obtenu avec la régression multi-linéaire en fonction du facteur correctif  $K$  calculé par simulation MCNP (référence)**

Grâce aux deux études multiparamétriques, il est maintenant possible de calculer un facteur correctif  $K$  pour n'importe quelles caractéristiques d'échantillon (densité, hauteur de remplissage, teneur en uranium issue d'une première interprétation avec les caractéristiques de l'échantillon type). Ainsi, les différentes teneurs en uranium reposant sur les zones U2 et U3 ont pu être calculées et sont représentées dans les deux graphiques suivants. Les différentes incertitudes de mesures sont abordées dans le § III.6 et l'on considèrera une incertitude moyenne de 30 % sur l'ensemble des teneurs mesurées avec la zone U2 et de 23 % avec la zone U3 (la zone U2 étant plus impactée par l'incertitude liée à la minéralogie de l'échantillon et à la statistique de comptage).

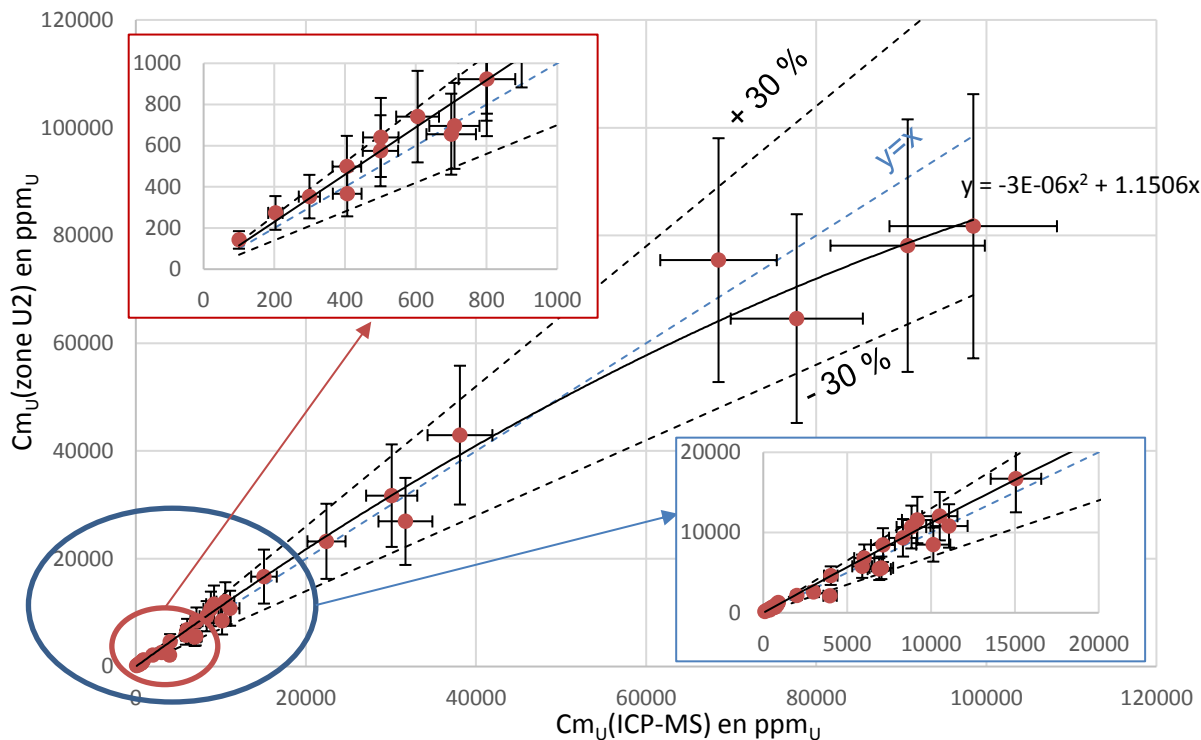


Figure 113 : Cm<sub>U</sub>(BE) mesurée pour tous les échantillons avec la zone « uranium 2 » en fonction de la teneur de référence (ICP-MS)

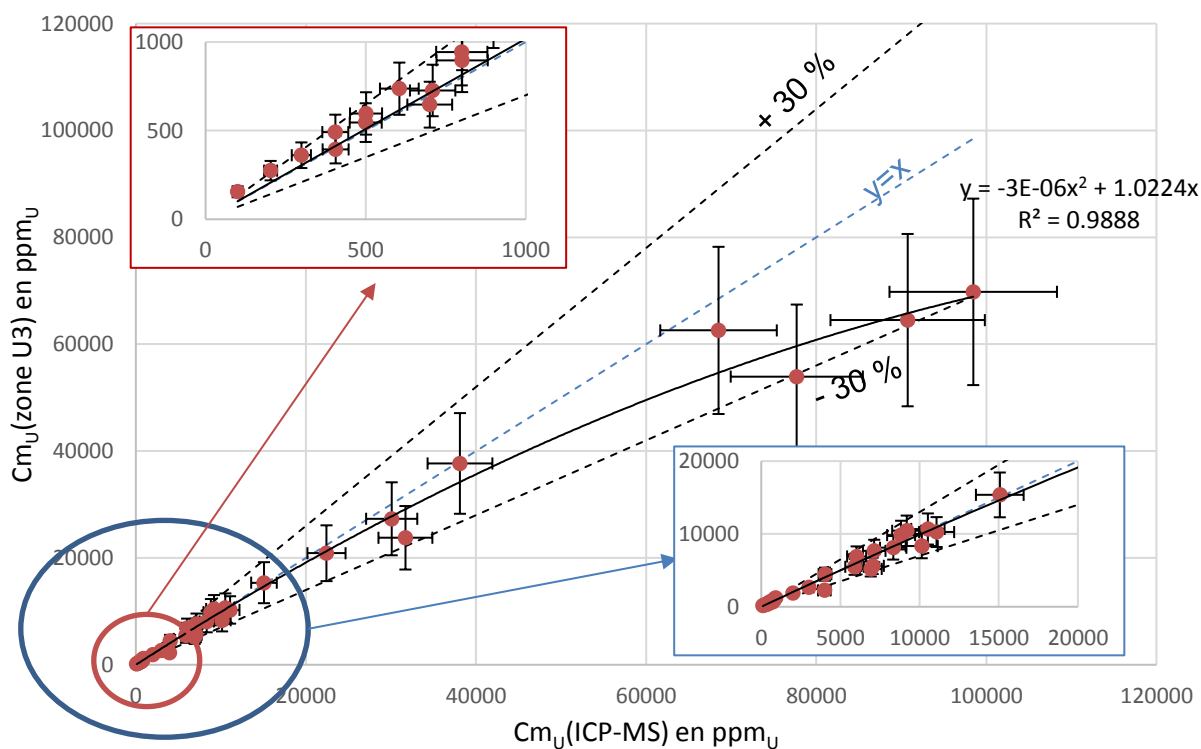


Figure 114 : Cm<sub>U</sub>(BE) mesurée pour tous les échantillons avec la zone « uranium 3 » en fonction de la teneur de référence (ICP-MS)

En sélectionnant plus précisément le signal de l'uranium dans les spectres (zones « uranium 2 et 3 »), on améliore significativement la précision sur les teneurs Cm<sub>U</sub>(BE) calculées par rapport à la Figure 109 (zone U1). L'utilisation de la zone « uranium 3 » permet même d'obtenir des différences relatives

inférieures à 30 % avec la teneur de référence sur toute la plage étudiée. En effet, l'émission à 92 keV est correctement simulée et l'émission de fluorescence X de l'uranium à 98.4 keV augmente avec la teneur de l'échantillon, ce qui compense l'auto-atténuation des rayonnements gamma de 92 keV du  $^{234}\text{Th}$  (voir Figure 97). Cet effet de compensation tend à rendre la zone U3 plus stable vis-à-vis de la teneur par rapport aux zones U1 et U2. Cette stabilité est aussi à observer sur la plus faible fluctuation du coefficient correctif de l'auto-absorption  $K_{\text{cmU0}}$  (voir annexe A.9) pour la zone U3. Cependant, on remarque pour la zone « uranium 3 », une sous-estimation systématique des fortes teneurs en uranium mesurées par rapport aux teneurs de référence. Une étude complémentaire, menée dans la partie suivante, a permis de démontrer que l'embase UNISPEC utilisée initialement lors des mesures NaI, ne corrigeait pas de manière satisfaisante les pertes de comptage, et ce à cause de la technologie du convertisseur analogique-numérique employée, de type Wilkinson (60 MHz). La partie suivante (§ III.5), montre qu'en utilisant une électronique numérique plus récente, de type OSPREY, les fortes teneurs en uranium mesurées avec la zone « uranium 3 » sont plus proches des teneurs de référence.

Le tableau suivant récapitule, pour tous les échantillons, les teneurs en uranium calculées avec les zones U1, U2 et U3, ainsi que l'écart relatif moyen avec la teneur de référence (dernière ligne).

**Tableau 39 : Récapitulatif des teneurs en uranium mesurées avec les zones U1, U2 et U3**

| <b>Cm<sub>U</sub>(ICP-MS) (ppm<sub>U</sub>)<br/>Référence</b> | <b>Cm<sub>U</sub>(BE) (ppm<sub>U</sub>)<br/>Zone U1</b> | <b>Cm<sub>U</sub>(BE) (ppm<sub>U</sub>)<br/>Zone U2</b> | <b>Cm<sub>U</sub>(BE) (ppm<sub>U</sub>)<br/>Zone U3</b> |
|---|---|---|---|
| 100   | 148   | 142   | 155   |
| 203   | 287   | 273   | 274   |
| 299   | 388   | 352   | 361   |
| 405   | 544   | 498   | 492   |
| 406   | 371   | 367   | 394   |
| 500   | 615   | 575   | 545   |
| 501   | 690   | 640   | 597   |
| 605   | 772   | 741   | 737   |
| 700   | 686   | 656   | 647   |
| 709   | 678   | 696   | 727   |
| 800   | 1133  | 1030  | 944   |
| 801   | 943   | 923   | 897   |
| 801   | 1115  | 1079  | 1051  |
| 899   | 1313  | 1261  | 1208  |
| 2000  | 2192  | 2131  | 1889  |
| 3007  | 2612  | 2602  | 2691  |
| 3894  | 2114  | 2119  | 2258  |
| 4024  | 4993  | 4627  | 4477  |
| 5895  | 5821  | 5797  | 5486  |
| 6024  | 6873  | 6809  | 6910  |
| 6916  | 5626  | 5445  | 5196  |
| 7038  | 5674  | 5599  | 5622  |
| 7134  | 9114  | 8433  | 7669  |
| 8332  | 10503   | 9342  | 8100  |
| 8832  | 11746   | 10690   | 9843  |
| 9187  | 12434   | 11562   | 10435   |
| 10136   | 8798  | 8497  | 8328  |
| 10525   | 13483   | 12037   | 10682   |
| 11076   | 11235   | 10822   | 10259   |
| 15066   | 17744   | 16694   | 15361   |
| 22416   | 24552   | 23239   | 20877   |
| 30083   | 36235   | 31713   | 27319   |
| 31696   | 28622   | 26931   | 23766   |
| 38112   | 42516   | 42944   | 37679   |
| 68512   | 68506   | 75423   | 62577   |
| 77713   | 52713   | 64573   | 53934   |
| 90747   | 67779   | 78114   | 64500   |
| 98457   | 64096   | 81714   | 69794   |
| <b>Ecart moyen avec la teneur de référence</b>                | <b>23.02 %</b>  | <b>17.73 %</b>  | <b>16.64 %</b>  |

### III.5 Comparaison des embases UNISPEC et OSPREY à fort taux de comptage

Les mesures menées avec le détecteur NaI au Laboratoire de Mesures Nucléaires ont été initialement réalisées avec une embase de type UNISPEC, qui donne de bons résultats à faible taux de comptage mais semble saturer à haute teneur en uranium. Cette embase, numérise l'impulsion grâce à un codeur de type Wilkinson (codeur à rampe) dont le principe est présenté dans la figure suivante. Le signal d'entrée charge une capacité qui est ensuite déchargée à courant constant. Lors de cette décharge, un oscillateur délivre des impulsions jusqu'à la remise à zéro de la capacité. Le nombre de coups d'horloge du générateur haute fréquence (60 MHz dans le cas de l'embase UNISPEC) est proportionnel à la hauteur de l'impulsion analogique, qui est ainsi numérisée. Cette technologie historique induit un temps mort fonction de la hauteur de l'impulsion d'entrée et donc de l'énergie du rayonnement incident.

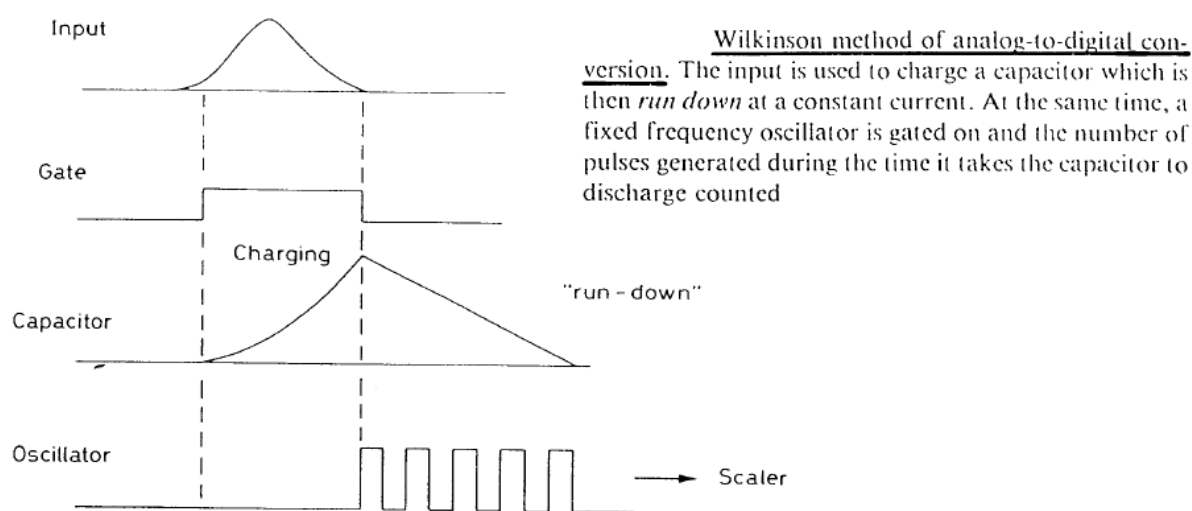


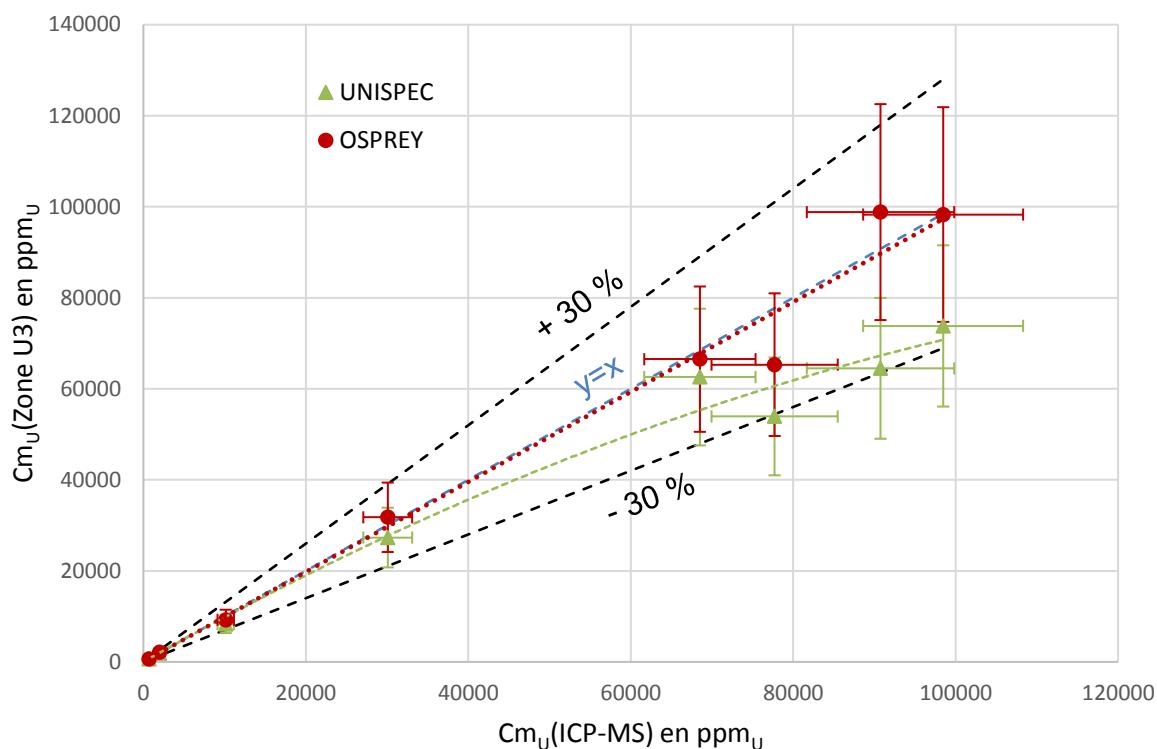
Figure 115 : Principe d'un codeur Wilkinson [59]

Dans le but d'analyser une plus large gamme de taux de comptage, allant jusqu'à 100 000 coups.s<sup>-1</sup>, et donc de teneurs en uranium, il a été décidé d'utiliser une embase plus récente avec un convertisseur analogique numérique rapide (typiquement flash ADC, non précisé dans la fiche produit [60]) échantillonnant le signal analogique à une fréquence de 20 MHz. Les impulsions sont ensuite mises en forme avec un filtre numérique trapézoïdal avec un temps de montée (Rise time) et un plateau (Flat top) identiques, égaux à 1  $\mu$ s (voir § II.6.1.2).

Afin de comparer les embases UNISPEC et OSPREY, 14 nouvelles mesures de teneur en uranium ont été réalisées avec 7 échantillons, (identiques à ceux étudiés dans le § II.6.2.5 pour l'étude du temps mort avec le détecteur germanium Falcon) couvrant la gamme de teneurs étudiée (soit une mesure avec l'embase OSPREY et une mesure avec l'embase UNISPEC pour chaque échantillon). Le tableau suivant récapitule les taux de comptage dans les zones U3 et Rn ainsi que l'aire nette dans la raie à 609 keV pour les deux embases utilisées. La Figure 116 montre les teneurs en uranium obtenues avec les deux embases en fonction de la valeur de référence obtenue par ICP-MS. Sur cette figure, les barres d'erreur correspondent toujours à l'incertitude de mesure totale de 23 % explicitée au § III.6.

**Tableau 40 : Taux de comptage dans la zone Uranium 3, dans la zone Radon et dans l'aire nette à 609 keV mesurées lors de l'utilisation de deux embases : UNISPEC et OSPREY et teneurs en uranium calculées.**

| N° | Embase | Cm <sub>U</sub> (ICP-MS)<br>(ppm <sub>U</sub> )<br>référence | UNISPEC                       |        |                      |   |  | OSPREY            |                               |        |                      |   |  |                   |
|----|--------|--|-------------------------------|--------|----------------------|---|--|-------------------|-------------------------------|--------|----------------------|---|--|-------------------|
|    |        |  | Zone (coups.s <sup>-1</sup> ) |        | $\frac{C_U}{C_{Rn}}$ | Sn(609 keV)<br>(coups.s <sup>-1</sup> ) | Cm <sub>U</sub><br>(ppm <sub>U</sub> ) | Temps mort<br>(%) | Zone (coups.s <sup>-1</sup> ) |        | $\frac{C_U}{C_{Rn}}$ | Sn(609 keV)<br>(coups.s <sup>-1</sup> ) | Cm <sub>U</sub><br>(ppm <sub>U</sub> ) | Temps mort<br>(%) |
|    |        |  | U3                            | Rn     |                      |   |  |                   | U3                            | Rn     |                      |   |  |                   |
| 35 | 700    |  | 38.4                          | 41.5   | 0.93                 | 29.3                                    | 647                                    | 0.38              | 39.1                          | 43.3   | 0.90                 | 32.0                                    | 675                                    | 0.47              |
| 23 | 2000   |  | 187.6                         | 273.3  | 0.69                 | 189.8                                   | 1889                                   | 1.63              | 199.4                         | 286.7  | 0.70                 | 207.0                                   | 2150                                   | 2.65              |
| 6  | 10136  |  | 524.4                         | 536.4  | 0.98                 | 384.0                                   | 8328                                   | 3.19              | 562.2                         | 559.7  | 1.00                 | 406.1                                   | 9245                                   | 5.26              |
| 32 | 30083  |  | 2001.4                        | 2069.9 | 0.97                 | 1371.6                                  | 27319                                  | 18.26             | 2138.8                        | 2126.8 | 1.01                 | 1516.1                                  | 31770                                  | 16.71             |
| 18 | 68512  |  | 5469.5                        | 5567.0 | 0.98                 | 3571.0                                  | 62577                                  | 38.48             | 5671.8                        | 5979.8 | 0.95                 | 4053.2                                  | 66512                                  | 34.16             |
| 12 | 77713  |  | 5622.2                        | 5728.7 | 0.98                 | 3528.7                                  | 53934                                  | 38.97             | 6174.3                        | 6194.1 | 1.00                 | 4073.2                                  | 65302                                  | 35.01             |
| 10 | 90747  |  | 5697.6                        | 5807.3 | 0.98                 | 3666.2                                  | 64500                                  | 39.48             | 7125.4                        | 6912.4 | 1.03                 | 4496.9                                  | 98823                                  | 36.50             |
| 16 | 98457  |  | 6427.4                        | 6554.5 | 0.98                 | 4038.9                                  | 68279                                  | 43.02             | 7759.5                        | 8002.6 | 0.97                 | 5135.8                                  | 98286                                  | 40.97             |


**Figure 116 : Teneurs en uranium Cm<sub>U</sub>(Zone U3) obtenues avec les deux embases UNISPEC et OSPREY par rapport à la teneur de référence obtenue par ICP-MS.**

On constate donc que la nouvelle embase OSPREY permet de retrouver des teneurs en uranium plus proches de la valeur de référence à fort taux de comptage, les nouvelles teneurs obtenues avec l'embase OSPREY étant supérieures de 10 à 40 % par rapport à celles obtenues avec l'embase UNISPEC pour les 4 échantillons de plus forte teneur. La distorsion du spectre gamma entre les deux embases est observable sur la Figure 117 pour l'échantillon n°16 de plus grande teneur en uranium (98457 ppm<sub>U</sub>). Cette distorsion n'est plus observée à faible taux de comptage lors de la mesure de l'échantillon n°35 de 700 ppm<sub>U</sub> (voir Figure 118). L'effet de cette distorsion sur le ratio des comptages C<sub>U</sub>/C<sub>Rn</sub> reste cependant limité (voir Tableau 40), le numérateur et le dénominateur étant affectés de pertes de comptage voisines, bien qu'avec le codeur Wilkinson nous attendions des pertes de comptage différentes en fonction de l'énergie. Par contre, les comptages sont nettement plus faibles avec l'embase UNISPEC qu'avec l'embase OSPREY à forte teneur (Figure 117). En particulier, l'aire nette de la raie à 609 keV est affectée à fort taux de comptage avec l'embase UNISPEC, ce qui explique in fine la meilleure adéquation aux teneurs de référence avec l'embase OSPREY.

Notons cependant, comme abordé dans l'annexe A.10, que les simulations numériques sous-estiment systématiquement les spectres expérimentaux à haute teneur (fort taux de comptage), a priori en raison de phénomènes d'empilements non modélisés. La forme spécifique du signal en sortie du photomultiplicateur du scintillateur Na (voir Figure 152 et Figure 153 - Annexe A.10) avec notamment un temps de montée rapide de quelques dizaines de nanosecondes, ne peut en effet être correctement numérisée avec la fréquence d'échantillonnage trop faible de l'embase OSPREY (20 MHz soit un échantillon toutes les 50 ns). Une étape de préamplification est donc réalisée dans cette embase, qui modifie le signal en une impulsion plus longue notamment au niveau du front de montée, entraînant un taux significatif d'empilements à très haute teneur (voir Annexe A.10).

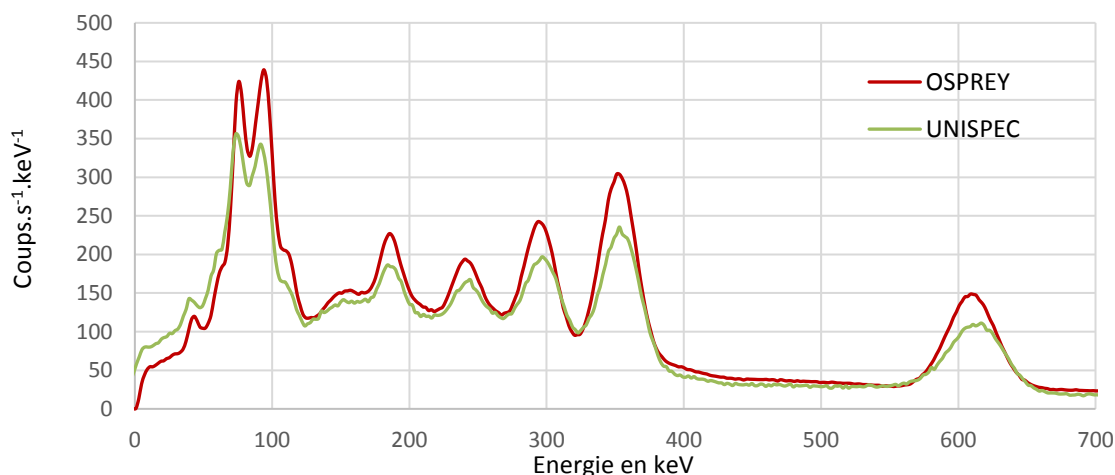


Figure 117 : spectres OSPREY et UNISPEC pour l'échantillon n°16 de 98457 ppm<sub>U</sub>.

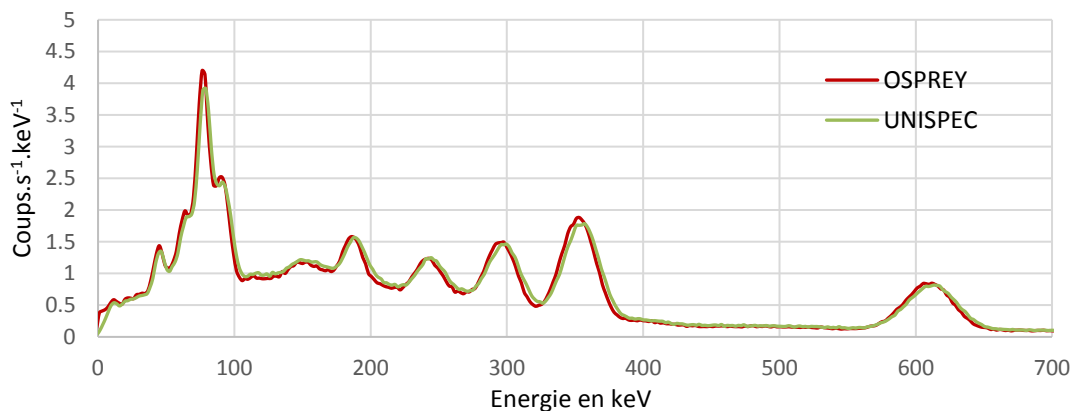


Figure 118 : spectres OSPREY et UNISPEC pour l'échantillon n°35 de 700 ppm<sub>U</sub>.

### III.6 Incertitude totale de la méthode

Ce paragraphe a pour objectif d'estimer l'incertitude sur la teneur en uranium calculée avec la méthode par bandes d'énergie et de déterminer le temps d'acquisition nécessaire pour les 38 échantillons, en utilisant la zone « uranium 3 » optimale. Cinq causes principales d'incertitude ont été mises en évidence dans les paragraphes précédents et sont rappelées ci-dessous.

- **Incertain due aux caractéristiques de l'échantillon** : hauteur, densité, teneur en uranium (phénomène d'auto-atténuation). Pour tenir compte des différentes caractéristiques de l'échantillon, un facteur correctif  $K(d,h,Cm_{U0})$  a été calculé grâce à une étude multiparamétrique (voir Figure 112). On estime à 11 % l'incertitude relative due aux caractéristiques de l'échantillon et l'utilisation du facteur correctif  $K$  (valeur enveloppe). L'écart type résiduel absolu lors de l'étude

multiparamétrique est de 0.0322. L'incertitude liée aux caractéristiques de l'échantillon est répercutée dans l'incertitude du facteur  $K_{U3}$ . L'expression mathématique de ce facteur K en fonction de d, h et  $C_{mU0}$  (voir Figure 112) permet de calculer l'incertitude totale liée aux caractéristiques de l'échantillon. Dans le cas de l'échantillon type où l'on considère une incertitude de 10 % sur la hauteur (soit 5 mm pour 5 cm de hauteur), 10 % sur la densité (soit 0.13 pour une densité de 1.3) et de 10 % sur la teneur initiale (soit 100 ppm<sub>U</sub> pour 1 000 ppm<sub>U</sub>), l'incertitude sur le facteur K est ainsi de 5.36 %. La valeur enveloppe de 11 % correspond, quant à elle, à un échantillon de 100 000 ppm, de densité 1.6 et de hauteur 9 cm où les caractéristiques géométriques sont connues à 10 % près.

- Incertitude due à la minéralogie de l'échantillon.** L'étude menée au § III.3.4.3 a montré que l'incertitude liée à la minéralogie de l'échantillon peut entraîner une incertitude relative de 15 % sur la teneur en uranium avec la zone U1 (voir Tableau 34, cas  $Na_2CO_3$ , le cas du soufre pur étant jugé non réaliste). Cette incertitude est plus faible dans le cas de l'utilisation de la zone U3 car elle est située à plus haute énergie et est moins impactée par la minéralogie (voir tableau suivant). La teneur en uranium estimée peut ainsi varier de +5 % pour un échantillon de  $Na_2CO_3$  à -16 % pour un échantillon de soufre. Néanmoins, un échantillon ne peut être seulement composé uniquement de soufre ou de carbonate de sodium et les variations extrêmes présentées sur la minéralogie surestiment les fluctuations réelles pour du minerai d'uranium. En accord avec ORANO Mining, on estime à **+/- 5 %** l'incertitude sur la teneur en uranium due à la méconnaissance de la minéralogie réelle de l'échantillon (écarts entre  $Na_2CO_3$  et  $SiO_2$  et entre  $SiO_2$  et du gypse au vu de la Figure 45).

**Tableau 41 : Effet de la minéralogie sur le déséquilibre calculé**

| Minéralogie | $\frac{A(^{238}U)}{A(^{214}Bi)} = \frac{C_U - \beta}{C_{Rn}} = \alpha$ |         |
|-------------|--|---------|
|             | Zone U1  | Zone U3 |
| $Na_2CO_3$  | 1.15   | 1.05    |
| $SiO_2$     | 1  | 1       |
| S           | 0.55   | 0.84    |

- Incertitude due à une possible hétérogénéité de l'échantillon.** Lors d'une forte hétérogénéité (cas H1, § III.3.4.5), la sous-estimation de la teneur en uranium est telle qu'il est impossible de la calculer pour la zone U1 (valeur négative). Néanmoins, lorsque l'on considère la zone U3, la sous-estimation de la teneur en uranium n'est que de 21 %, voir Tableau 42. De plus lorsque l'on considère un concassage d'échantillon avec une taille de grain inférieur à 2 mm (cas hétérogénéité H2, § III.3.4.5), la surestimation de la teneur en uranium n'est plus que de 2 % (due à une forte fluorescence à 98 keV de l'uranium, voir Figure 97). Cette valeur est moindre que celle de la zone U1 car la zone U3 est plus stable vis-à-vis d'une hétérogénéité que la zone U1 (voir Figure 105). Par la suite, pour des échantillons concassés à un grain inférieur à 2 mm, on considérera une incertitude sur la teneur en uranium de l'ordre de 5 % pour tenir compte du fait que l'hétérogénéité H2 n'est pas nécessairement le cas enveloppe (plusieurs pépites de diamètre inférieur à 2 mm au lieu d'une seule pépite au milieu d'un minerai homogène contenant le reste de l'uranium, ce qui correspond à la définition de H2 au § III.3.4.5). Par contre, pour des échantillons grossièrement concassés (grain maximum de 8 mm), on considérera une incertitude de l'ordre de 20 %.

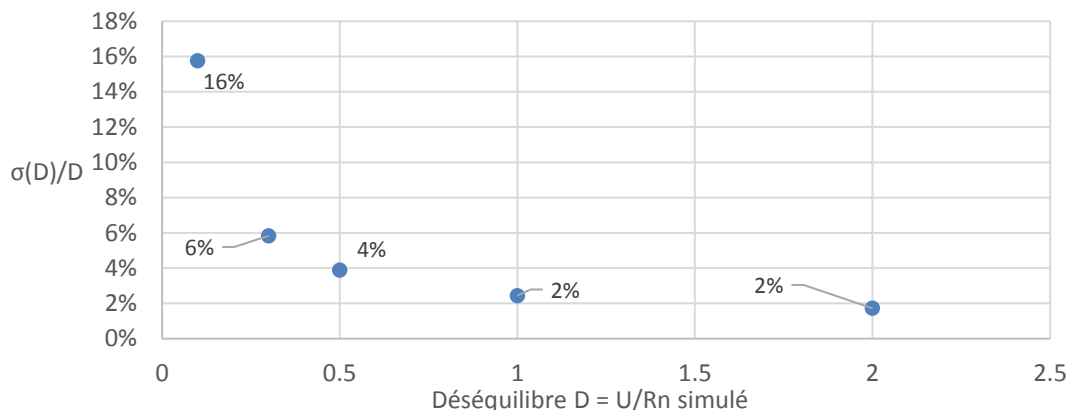
**Tableau 42 : Effet de l'hétérogénéité sur le déséquilibre calculé**

|          | $\frac{A(^{238}U)}{A(^{214}Bi)} = \frac{C_U - \beta}{C_{Rn}} = \alpha$ |         |
|----------|--|---------|
|          | Zone U1  | Zone U3 |
| Homogène | 1.00   | 1       |
| H1       | -0.29  | 0.79    |
| H2       | 0.84   | 1.02    |

- Incertitude due à la statistique de comptage.** Comme montré au § III.3.4.6, une faible incertitude statistique sur le ratio  $C_U/C_{Rn}$  peut induire une forte incertitude sur la teneur en uranium en cas de déséquilibre  $U/Rn < 1$ . Les effets induits par la variation du ratio  $C_U/C_{Rn}$  de +/- 1 % ont montré que

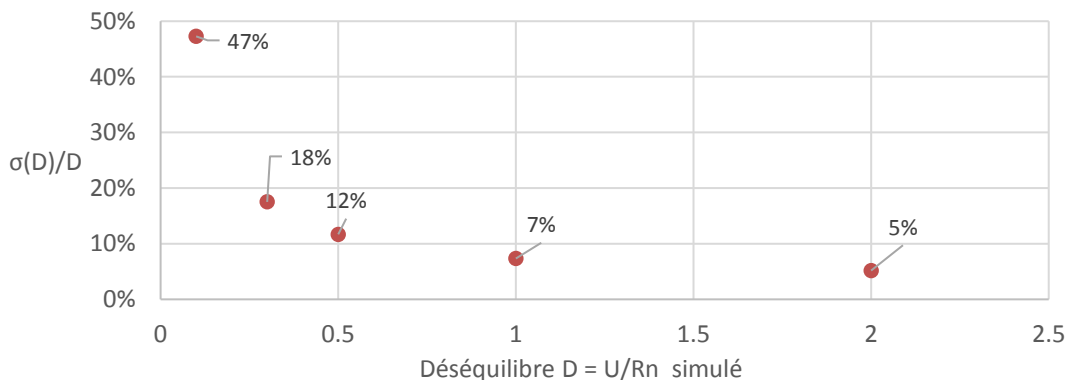


le déséquilibre  $D = \frac{A(^{238}_{92}\text{U})}{A(^{214}_{83}\text{Bi})}$  admet une incertitude de 24 % (voir Figure 107) dans le cas  $U/Rn = 0.1$ . Cependant, lors de l'utilisation de la zone U3, cette variation diminue à 16 % comme le montre la Figure 119. On considérera donc par la suite un cas enveloppe sur l'incertitude relative associée de **16 % et des temps de mesure permettant d'obtenir une incertitude statistique sur le ratio  $C_U/C_{Rn} < 1$  %**.



**Figure 119 : Incertitude induite sur le ratio des activités  $D = U/Rn$  pour une variation statistique du ratio  $C_U/C_{Rn}$  de +/- 1 % dans le cas de l'utilisation de la zone U3.**

**Remarque :** Dans le cas où la variation du ratio  $C_U/C_{Rn}$  vaut +/- 3 % l'incertitude sur le déséquilibre  $D = \frac{A(^{238}_{92}\text{U})}{A(^{214}_{83}\text{Bi})}$  calculé peut aller jusqu'à 47 % (cas  $U/Rn = 0.1$  – voir Figure 120). Néanmoins, de telles fluctuations du ratio  $C_U/C_{Rn}$  sont évitables avec un détecteur stabilisé en température et des temps de comptage suffisamment longs.



**Figure 120 : Incertitude induite sur le ratio des activités  $D = U/Rn$  pour une variation statistique du ratio  $C_U/C_{Rn}$  de +/- 3 % dans le cas de l'utilisation de la zone U3.**

- **Incertitude due à la mesure de l'activité massique en  $^{214}\text{Bi}$ .** L'incertitude principale lors de l'estimation de l'activité massique en  $^{214}\text{Bi}$  repose sur l'efficacité de détection à 609 keV calculée par simulation Monte-Carlo (MCNP). On estime à **10 %** cette incertitude, due principalement aux caractéristiques de l'échantillon (hauteur, masse, minéralogie et teneur en uranium) et à la simulation du détecteur NaI 3"x3". Cette incertitude est du même ordre de grandeur que celle obtenue sur la raie à 1001 keV lors d'une étude par spectrométrie gamma haute résolution classique.

En résumé, l'incertitude sur la teneur en uranium peut se déduire des incertitudes précédentes par somme quadratique. On trouve ainsi une incertitude relative totale sur la teneur en uranium mesurée avec la zone U3 de **23 % si l'échantillon est finement concassé (2 mm) et homogénéisé. Pour un échantillon plus grossièrement concassé (8 mm) cette incertitude s'élève à environ 30 %**.



**De la même manière, l'incertitude sur la teneur en uranium mesurée avec la zone U2 a été estimée à 30 % pour un échantillon finement concassé (2 mm).**

**Remarque :** Dans le cas d'une étude où les échantillons ont un déséquilibre U/Rn > 0.3, il est envisageable de mesurer les échantillons moins longtemps en se contentant d'une incertitude statistique sur le ratio  $C_U/C_{Rn}$  de 3 %, l'incertitude sur la teneur U étant dans ce cas de 18 % (Figure 120), c'est-à-dire très proche des 16 % enveloppe de la Figure 119 (avec une incertitude  $C_U/C_{Rn}$  de 1 % et un déséquilibre U/Rn = 0.1). In fine, l'incertitude totale sur la teneur en uranium resterait donc proche de l'incertitude précédente (23 % ou 30 % selon la finesse du concassage).

En ce qui concerne le temps de mesure minimal pour obtenir cette incertitude, comme l'a montré le paragraphe précédent, le facteur limitant est l'incertitude statistique relative du ratio des comptages  $C_U/C_{Rn}$ . Celle-ci doit être inférieure à 1 % et est calculée comme suit :

$$\frac{\sigma_{\frac{C_U}{C_{Rn}}}}{\frac{C_U}{C_{Rn}}} = \sqrt{\left(\frac{\sigma_{C_U}}{C_U}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{C_{Rn}}}{C_{Rn}}\right)^2} = \sqrt{\left(\frac{1}{\sqrt{C_U}}\right)^2 + \left(\frac{1}{\sqrt{C_{Rn}}}\right)^2} = \sqrt{\left(\frac{1}{\tau_U \times Tc}\right) + \left(\frac{1}{\tau_{Rn} \times Tc}\right)}$$

Où :

- $\frac{\sigma_{C_U}}{C_{Rn}}$  : incertitude statistique relative sur le ratio  $C_U/C_{Rn}$ ,
- $\frac{\sigma_{C_{Rn}}}{C_{Rn}}$  : incertitude statistique relative sur  $C_{Rn}$  où  $\sigma_{C_{Rn}} = \sqrt{C_{Rn}}$  car le nombre d'impulsions dans la zone radon suit une loi normale,
- $\frac{\sigma_{C_U}}{C_U}$  : incertitude statistique relative sur  $C_U$  où  $\sigma_{C_U} = \sqrt{C_U}$  car le nombre d'impulsions dans la zone uranium suit une loi normale,
- $\tau_U$  : taux de comptage dans la zone U,
- $\tau_{Rn}$  : taux de comptage dans la zone Rn,
- $Tc$  : temps d'acquisition.

De cette formule, on peut déduire le temps minimum, noté  $T_{min}$ , tel que  $\frac{\sigma_{\frac{C_U}{C_{Rn}}}}{\frac{C_U}{C_{Rn}}} \leq 1\%$  :

$$T_{min} = \frac{\left(\frac{1}{\tau_U}\right) + \left(\frac{1}{\tau_{Rn}}\right)}{(1\%)^2}$$

Le Tableau 43 présente les temps de mesure nécessaires pour chaque échantillon de teneur inférieure à 10 000 ppm<sub>U</sub> afin d'obtenir une erreur statistique sur le ratio  $C_U/C_{Rn}$  de moins de 3 % et 1 %, respectivement. Ce tableau est complété, à titre de comparaison, par les temps de comptage minimaux pour atteindre 1000 coups dans l'aire nette de la raie à 1001 keV (méthode de spectrométrie gamma haute résolution de référence) avec le détecteur GeHP Falcon 5000 (voir Chapitre II).

**Remarque :** Dans le cas où le nombre de coups est inférieur à 1000 coups, il est difficile de faire correspondre une gaussienne avec la raie à 1001 keV et l'incertitude sur la teneur calculée augmente fortement (elle n'est plus liée à la seule statistique de Poisson). Prenons l'exemple de l'échantillon de faible teneur 100 ppm<sub>U</sub> : deux mesures ont été réalisées avec détecteur GeHP, l'une de 70 190 secondes et une plus courte de 8 927 secondes. Dans le 1<sup>er</sup> cas, 1069 coups sont comptés, soit un taux de comptage de 0.015 c/s et une incertitude sur l'ajustement gaussien de 11.37 % annoncée par le logiciel de traitement de spectre Génie 2000. Dans le 2<sup>ème</sup> cas, 211 coups sont comptés, soit un taux de comptage de 0.0236 c/s (plus de 50 % d'écart avec le cas précédent) et une incertitude annoncée sur l'ajustement gaussien de 26 %, non représentative de l'écart observé entre les taux

de comptage. On conclut donc que pour comparer les deux approches, c'est-à-dire la méthode par bandes d'énergie et la spectrométrie gamma haute résolution, il faut au moins 1000 coups dans l'aire nette à 1001 keV, sinon la teneur en uranium calculée est entachée d'une incertitude trop importante.

Le temps de comptage dépend bien évidemment du déséquilibre U/Rn de l'échantillon, néanmoins quelques minutes de mesure suffisent avec la méthode par bandes d'énergie qui a été exposée ici.

Le gain en temps d'acquisition entre la méthode de spectrométrie gamma classique (raie à 1001 keV avec un détecteur GeHP) et la nouvelle méthode par bandes d'énergie (détecteur NaI) est de l'ordre d'un facteur 40 quand on recherche une précision statistique de 1 % sur le ratio  $C_U/C_{Rn}$  (pour limiter l'incertitude induite par un éventuel déséquilibre U/Rn = 0.1, voir remarque de la page précédente). Ce gain est même plus important dans la majorité des cas quand la précision recherchée sur le ratio n'est que de 3 % (si déséquilibre > 0.3).

**Tableau 43 : Temps de comptage  $T_{min}$  (en secondes) nécessaire pour chaque échantillon de teneur inférieure à 10 000 ppmu**

| Cm <sub>U</sub> (ICP-MS)<br>en ppm <sub>U</sub> | Détecteur NaI 3"x3"  |   | Détecteur GeHP<br>Falcon 5000  | $\frac{T_{min}(GeHP)}{T_{min} 1\%(NaI)}$ |
|---|--|---|--|--|
|   | $T_{min} 3\%(NaI)$ pour<br>obtenir<br>$C_U/C_{Rn} +/- 3\%$ | $T_{min} 1\%(NaI)$ pour obtenir<br>$C_U/C_{Rn} +/- 1\%$ | Temps nécessaire $T_{min}$ (s)<br>pour obtenir<br>Sn(1001 keV) = 1 000 coups |  |
| 100   | 176  | 1585  | 65666  | 41                                       |
| 203   | 122  | 1095  | 41399  | 38                                       |
| 299   | 65   | 586   | 28225  | 48                                       |
| 405   | 34   | 309   | 12570  | 41                                       |
| 406   | 53   | 475   | 18383  | 39                                       |
| 500   | 25   | 223   | 11490  | 52                                       |
| 501   | 67   | 606   | 22585  | 37                                       |
| 605   | 46   | 411   | 13687  | 33                                       |
| 700   | 44   | 396   | 11361  | 29                                       |
| 709   | 61   | 552   | 10782  | 20                                       |
| 800   | 20   | 178   | 8046   | 45                                       |
| 801   | 41   | 371   | 12039  | 32                                       |
| 801   | 43   | 383   | 13833  | 36                                       |
| 899   | 19   | 171   | 5760   | 34                                       |
| 2000  | 9  | 78  | 4617   | 59                                       |
| 3007  | 7  | 64  | 2138   | 33                                       |
| 3984  | 7  | 62  | 1824   | 30                                       |
| 4024  | 10   | 93  | 3000   | 32                                       |
| 5895  | 6  | 54  | 1333   | 25                                       |
| 6024  | 3  | 27  | 943  | 35                                       |
| 6916  | 7  | 63  | 1344   | 21                                       |
| 7038  | 4  | 40  | 1153   | 29                                       |
| 7134  | 3  | 26  | 1083   | 41                                       |
| 8332  | 4  | 32  | 1241   | 39                                       |
| 8832  | 14   | 126   | 3131   | 25                                       |
| 9187  | 2  | 18  | 719  | 39                                       |
| 10136   | 3  | 29  | 844  | 29                                       |

### III.7 Conclusion et perspectives de la méthode par bandes d'énergie

Une modélisation MCNP de la sonde NaI 3"x3" à disposition au Laboratoire de Mesures Nucléaires a été validée grâce à la mesure expérimentale de l'efficacité de détection à 30 cm. De plus, la modélisation de la scène de mesure comprenant le collimateur en plomb et en cuivre a elle aussi été vérifiée grâce à la mesure d'un échantillon de minerai d'uranium. Par la suite, cette modélisation a permis de mettre au point la méthode par bandes d'énergie du spectre gamma du minerai d'uranium. Le spectre est ainsi décomposé en deux zones d'énergie distinctes (vers 100 keV et 609 keV respectivement) qui permettent d'apprécier la contribution du haut (groupe uranium) et du bas de la chaîne radioactive (groupe radon) de l'<sup>238</sup>U. Un étalonnage numérique avec MCNP permet de définir deux coefficients, notés  $\alpha$  et  $\beta$ , qui lient les taux de comptage dans ces deux zones du spectre au déséquilibre U/Rn et, in fine, à la teneur en uranium du minerai moyennant le calcul de l'activité du radon par spectrométrie gamma classique via la raie à 609 keV du descendant <sup>214</sup>Bi. De nombreuses simulations ont permis de quantifier les effets liés à la teneur en uranium, la minéralogie, la densité, la hauteur de remplissage et l'hétérogénéité potentielle de l'échantillon. Des corrections ont été proposées pour la hauteur, la densité et l'auto-absorption aux teneurs élevées. Il n'est cependant pas possible avec cette méthode de détecter une hétérogénéité, contrairement à la spectrométrie gamma haute résolution présentée au chapitre II.

Lors de l'étude expérimentale, menée sur 38 échantillons prêtés par ORANO, les teneurs ont ainsi pu être corrigées de la hauteur de remplissage, de la densité de chaque échantillon et des effets d'auto-atténuation grâce à trois facteurs correctifs  $K_H$ ,  $K_D$  et  $K_{cmUO}$  paramétrés. Les résultats obtenus sur les teneurs mesurées ont montré que la zone uranium d'origine (50 à 110 keV) n'était pas optimale. Une zone plus adaptée, resserrée entre 87 et 110 keV, qui permet d'obtenir des teneurs plus proches de celles mesurées par ICP-MS, a été trouvée. Une approche multiparamétrique a permis de calculer un seul et unique facteur correctif  $K$  fonction de la densité, de la hauteur et de la teneur en uranium, ceci en vue de simplifier la mise en œuvre de la méthode. Pour finir, une étude sur le temps d'acquisition minimum associés à chaque échantillon a été menée et a permis de démontrer que la teneur en uranium d'un minerai peut être connue avec une incertitude relative de 23 % pour un concassage fin (meilleur que 2 mm), en des temps très courts de l'ordre de quelques minutes. Pour un concassage plus grossier (8 mm), l'incertitude s'élève à 30 %. Par ailleurs, en plus de l'embase de type UNISPEC initialement connectée au détecteur NaI utilisant un convertisseur analogique-numérique de type Wilkinson, une seconde embase a pu être testée de type OSPREY qui traite numériquement l'impulsion. Cette dernière permet de mesurer correctement des teneurs en uranium allant jusqu'à 100 000 ppmu, ce que ne pouvait pas réaliser l'embase UNISPEC en raison de pertes de comptage liées au temps mort.

La méthode reposant sur la lecture de deux zones énergétiques du spectre, il est important de compenser toute variation du gain lors de l'acquisition. Dans cette optique, une étude de la stabilité de la chaîne de mesure vis-à-vis de la température est à prévoir afin de s'assurer du bon fonctionnement de la méthode sur une plage représentative des sites miniers d'ORANO Mining, soit typiquement de - 30°C à + 50°C. Diverses méthodes de stabilisation de gain et/ou de calibration automatique pourront être envisagées, dont certaines sont disponibles sur des détecteurs du commerce [57]. Ce chapitre a permis de montrer tout l'intérêt de cette nouvelle méthode qui fera l'objet d'une industrialisation rapide par ORANO Mining, sur la base du procédé synthétique présenté en annexe A.11 et d'une demande de dépôt de brevet le 14 novembre 2018 sous le n°1860485.

Nous avons aussi étudié la possibilité d'utiliser un détecteur NaI 2"x2". Malgré un taux de comptage divisé par un facteur environ 2 (voir annexe A.12), ce type de détecteur pourrait être utilisé sur le terrain moyennant une augmentation acceptable des temps de mesure.

Notons de plus que cette nouvelle méthode pourrait être utilisée dans le cas de mesures en puits de forage, moyennant une adaptation des sondes radiométriques pour les doter de capacités spectrométriques (basiques), ou de mesures en ligne de minerai sur des bandes convoyeuses en sortie de mine.



# Conclusion générale

Nous avons vu que la mesure nucléaire appliquée à la mine d'uranium est un des enjeux majeurs d'ORANO Mining pour lui permettre de quantifier les ressources dont il dispose sur tout le cycle minier, que cela soit dans la mine sous forme de minerai d'uranium ou en sortie d'usine sous forme de *yellow cake*. Comme nous l'avons vu dans le **chapitre I** bibliographique, de nombreuses mesures nucléaires sont utilisées ou envisageables sur tout le cycle minier pour caractériser en continu la production :

- spectrométrie  $\gamma$  basse résolution à base de scintillateur de type NaI)
- spectrométrie  $\gamma$  haute résolution à base de semi-conducteur au germanium hyper pur,
- fluorescence X à base de détecteurs SDD ou Si-Pin,
- taux de comptage total ( $\beta$  et  $\gamma$ ),
- ratio  $\beta/\gamma$  (aussi appelé méthode Thommeret),
- mesures par interrogation neutronique.

Dans le cadre des études sur la sensibilité et la précision des mesures radiométriques de l'uranium, menées par ORANO Mining, en collaboration avec le Laboratoire de Mesures Nucléaires du CEA de Cadarache, cette thèse a développé deux nouvelles méthodes de caractérisation rapide de la teneur en uranium de minerai. Plusieurs pistes avaient été imaginées suite une campagne de mesures menée par le LMN à la station d'étalonnage radiométrique de Bessines, qui avait permis de mettre en évidence plusieurs informations présentes dans les spectres gamma de haute résolution pouvant permettre de caractériser la teneur en uranium :

- les raies gamma et X à 92 keV et 98 keV, très intenses, mais très sensibles aux caractéristiques de l'échantillon (minéralogie, densité, hétérogénéité...),
- la déformation du continuum Compton,
- la marche dans les spectres induite par l'absorption accrue des rayonnements à 115.6 keV due au *K-edge* de l'uranium.

Dans le cadre de la thèse, ces nouvelles informations ont permis de définir deux nouvelles méthodes de caractérisation rapides d'un minerai d'uranium. La première se base sur une mesure de spectrométrie gamma haute résolution, à l'aide d'un détecteur Falcon 5000 (GeHP de type planaire) permettant l'étude des deux raies gamma à 92 et 98 keV. La seconde, utilise un spectromètre gamma basse résolution, de type NaI, permettant seulement une analyse par bande d'énergie des spectres. Chacune des deux méthodes a donné lieu à un chapitre spécifique de cette thèse.

Dans le **chapitre II**, dédié à l'étude des mesures de spectrométrie gamma haute résolution, nous avons tout d'abord modélisé une géométrie « type » de mesure d'échantillon de minerai d'uranium avec un détecteur Falcon 5000 (GeHP) afin d'étudier, par simulation numérique, les performances et les paramètres d'influence de la méthode. Les deux indicateurs clé de la méthode, présents dans les spectres gamma haute résolution mais jusqu'à présent non utilisés de façon combinée, sont d'une part la raie à 92 keV, due à deux émissions radioactives (un rayonnement gamma du  $^{234}\text{Th}$  et un rayon X de  $^{235}\text{U}$ ), et d'autre part la raie à 98 keV, principalement due à l'auto-fluorescence de l'uranium (raie  $\text{XK}_{\alpha 1}$ ) induite par l'ensemble des rayonnements gamma émis au sein du minerai, ainsi qu'à une autre émission radioactive (un rayon X du  $^{234\text{m}}\text{Pa}$ ).

De nombreuses études paramétriques ont permis de quantifier la dépendance de ces deux indicateurs à la densité, la hauteur de remplissage, la minéralogie et l'hétérogénéité de l'échantillon. Deux études expérimentales ont ensuite permis de valider l'approche développée par simulation, grâce à des spectres d'échantillons de minerai d'uranium en provenance du Niger et de la Mongolie fournis par ORANO Mining, ainsi qu'avec des mesures réalisées sur d'autres échantillons couvrant une plus large plage de teneurs et

d'équilibres radioactifs au sein même du Laboratoire de Mesures Nucléaires pendant la thèse. Cette dernière étude expérimentale a aussi permis de réaliser une caractérisation plus fine du détecteur Falcon 5000 afin de s'affranchir des incertitudes de modélisation liées à sa géométrie. De plus, une étude sur l'optimisation des paramètres d'acquisition et de mise en forme des impulsions du détecteur Falcon 5000 a permis de mieux corriger les pertes de comptage dues au temps mort à forte teneur en uranium, et ce jusqu'à 100 000 ppm<sub>U</sub>.

Le principal avantage mis en évidence à l'utilisation de ces deux raies à 92 et 98 keV est un gain de temps significatif par rapport à l'utilisation de la raie à 1001 keV, qui nécessite plusieurs heures de comptage. Ces nouveaux indicateurs nécessitent en effet des temps de mesure de seulement quelques minutes. **Les temps de comptage pourront être diminués en moyenne d'un facteur 65 dans le cas homogène avec l'utilisation de la raie à 92 keV et d'un facteur supérieur à 2 pour des échantillons compris entre 200 et 5000 ppm<sub>U</sub> (croissant avec la teneur, un facteur 70 à 100 000 ppm<sub>U</sub>) avec la raie à 98 keV par rapport à ce qui se fait actuellement en mesure in-situ ou en laboratoire.**

De plus, une combinaison de ces deux indicateurs permet de **détecter la présence possible d'une hétérogénéité** de l'échantillon, car alors la teneur en uranium obtenue par la raie à 92 keV est sous-estimée (auto-absorption accrue) alors que celle de la raie à 98 keV est surestimée (fluorescence accrue). Rappelons que l'utilisation habituelle de la raie à 1001 keV (méthode de référence pour ORANO Mining) présente un risque de sous-estimer ou surestimer de manière significative la teneur en uranium (jusqu'à un facteur 2 pour les cas étudiés par simulation) dans le cas d'une pépité simulée en différentes localisations dans l'échantillon. Le procédé proposé permet donc d'améliorer la confiance sur le résultat de la mesure, ainsi que de recommander un broyage et une homogénéisation plus fins de l'échantillon en cas de forte hétérogénéité.

Cette nouvelle méthode de caractérisation de la teneur en uranium, couplée à la détection d'hétérogénéité, a permis de proposer à notre partenaire ORANO Mining un procédé industrialisable qui a donné lieu au **dépôt d'une demande de brevet** le 27 février 2018 sous le n°18 51744 [50].

Le **chapitre III** décrit une méthode basée sur des mesures de spectrométrie gamma basse résolution, à l'aide d'un détecteur NaI 3"x3". A l'instar de l'étude menée dans le chapitre II, une modélisation MCNP de la sonde NaI 3"x3", à disposition au Laboratoire de Mesures Nucléaires, a d'abord permis de mettre au point cette nouvelle méthode rapide de caractérisation de la teneur en uranium et d'étudier sa sensibilité aux variations de teneur en uranium, minéralogie, densité, hauteur de remplissage et aux hétérogénéités potentielles de l'échantillon. La méthode utilise deux zones d'énergie distinctes du spectre, l'une vers 100 keV et l'autre vers 609 keV, qui permettent d'apprécier la contribution du haut (groupe uranium) et du bas (groupe radon) de la chaîne radioactive de <sup>238</sup>U.

Un étalonnage numérique avec MCNP a permis de définir deux coefficients, notés  $\alpha$  et  $\beta$ , qui relient les taux de comptage dans ces deux zones du spectre au déséquilibre U/Rn et in fine à la teneur en uranium du minerai, moyennant le calcul de l'activité du radon par spectrométrie gamma classique via la raie à 609 keV du descendant <sup>214</sup>Bi.

Des corrections ont été proposées pour tenir compte de la variabilité de la hauteur, de la densité et de l'auto-absorption due à l'uranium aux teneurs élevées, grâce à des études multiparamétriques. Ces corrections s'appliquent à une première teneur, évaluée avec les coefficients d'étalonnage d'un échantillon type de référence présentant des caractéristiques fixes (hauteur, densité, teneur), et permettent d'obtenir une teneur en uranium plus précise tenant compte de la hauteur et de la densité apparente de chaque échantillon, ainsi que d'une auto-absorption et d'une auto-fluorescence adaptées aussi à chaque échantillon.

Par ailleurs, en plus de l'embase de type UNISPEC initialement connectée au détecteur NaI (convertisseur analogique-numérique de type Wilkinson), une seconde embase de type OSPREY (traitement numérique

du signal) a été testée, qui permet de mesurer correctement des teneurs en uranium allant jusqu'à 100 000 ppmU, ce que ne permet pas l'embase UNISPEC en raison des pertes de comptage liées au temps mort.

La méthodologie a ensuite été validée sur 38 échantillons prêtés par ORANO au LMN. Les résultats obtenus sur les teneurs mesurées ont montré que la zone associée à l'uranium d'origine (50 à 110 keV) n'était pas optimale. Une plus zone resserrée a donc été optimisée, comprise entre 87 et 110 keV, ce qui a permis d'obtenir des teneurs plus proches de celles mesurées par ICP-MS. En effet, la partie de très basse énergie (50 à 80 keV) de la zone originale est très sensible aux variations de minéralogie et de teneur en uranium, alors que la nouvelle zone bénéficie avantageusement d'un effet de compensation entre auto-absorption et auto-fluorescence.

Nous avons ainsi démontré que la teneur en uranium d'un minerai peut être mesurée avec une incertitude relative de l'ordre de 24 % pour un concassage fin (meilleur que 2 mm), avec des temps d'acquisition très courts de l'ordre de quelques minutes, ce qui représente ici encore **un gain d'un facteur 30** dans le cas d'échantillon homogène par rapport à une spectrométrie gamma de haute résolution classique via la raie à 1001 keV. Pour un concassage plus grossier (8 mm), l'incertitude s'élève à 30 %. L'avantage considérable de cette nouvelle méthode provient du détecteur utilisé, à savoir un scintillateur NaI qui ne nécessite pas de refroidissement et qui présente un faible coût par rapport à un semi-conducteur GeHP (quelques milliers d'euros contre plusieurs dizaines de milliers d'euros). Cette nouvelle méthode de caractérisation de la teneur a également permis de proposer à notre partenaire ORANO Mining un procédé industrialisable qui a fait lieu à un brevet déposé le 14 novembre 2018 sous le n°1860485. Le processus d'industrialisation est actuellement en cours.

En conclusion, cette thèse a permis de définir et valider, grâce à de nombreuses simulations et mesures expérimentales sur échantillons, deux nouvelles méthodes de caractérisation de la teneur en uranium de minerai par spectrométrie gamma haute et basse résolution, industrialisables par ORANO Mining.





# Perspectives

Les deux méthodes développées dans le cadre de cette thèse offrent de nombreuses perspectives d'amélioration des mesures existantes d'ORANO Mining.

Pour la mesure par bandes d'énergie avec détecteur NaI, on peut ainsi envisager les développements suivants :

- industrialisation par ORANO Mining la méthode pour les échantillons de minerai, aussi bien in-situ pour une première caractérisation rapide du minerai qu'en laboratoire. Cette nouvelle méthode semble intéresser fortement notre partenaire industriel qui souhaite l'industrialiser au plus vite ; dans ce cadre, l'utilisation d'un détecteur NaI 2"x2" est à envisager au lieu du détecteur 3"x3" utilisé pour ces travaux, même si ce dernier présente un taux de comptage supérieur (voir annexe A.12) car le premier est actuellement communément utilisé par ORANO Mining et il pourrait permettre d'alléger le dispositif en termes de blindage. Une nouvelle étude paramétrique des facteurs influents tels que la hauteur de remplissage, la densité, ou la teneur en uranium de l'échantillon sera alors à mener afin de répondre aux besoins de notre partenaire industriel ;
- amélioration de la méthode Thommeret décrite dans le chapitre I au § I.2.3. Cette méthode se base sur la mesure combinée de l'activité  $\beta + \gamma$  d'un échantillon à l'aide d'un détecteur Geiger Muller (ou NaI) et de l'activité  $\gamma$  seule de cet échantillon avec le même détecteur mais accompagné d'un écran d'acier (afin d'absorber les  $\beta$ ). Cependant, les échantillons doivent nécessairement être de faible volume afin de limiter l'auto-absorption  $\beta$ . L'utilisation de la méthode par bandes d'énergie peut à minima améliorer la méthode Thommeret sur la mesure de l'activité  $\gamma$  mesuré, voir la remplacer dans le cas où les échantillons sont volumineux. De plus, la méthode par bandes d'énergie nécessite qu'une seule et unique mesure, et non deux.
- étudier l'apport de la méthode pour les mesures en puits de forage afin de permettre une caractérisation d'éventuels déséquilibres radioactifs dans les sols (lixiviation in situ), ce qui n'est pas le cas avec les sondes actuelles qui ne permettent qu'un comptage total et peuvent donc conduire à fortement sous-estimer ou surestimer la teneur en uranium. Les sondes devront donc comporter une capacité spectrométrique, ce qui n'est pas le cas actuellement, pour permettre une lecture en surface, ce qui constitue un développement technologique à envisager pour ce type de mesure ;
- en marge de cette étude pour les puits de forage, il serait aussi intéressant de pouvoir caractériser des feuillettes d'uranium (veines plus riches), horizontaux ou avec pendage, en associant plusieurs détecteurs de type NaI collimatés pour rendre la mesure dissymétrique,

Pour ce qui est des mesures de spectrométrie gamma haute résolution avec détecteur GeHP, les perspectives concernent notamment :

- mesures sur carottes non concassées avec possibilités de détection d'hétérogénéité grâce à la comparaison des deux indicateurs  $C_{mU}(92 \text{ keV})$  et  $C_{mU}(98 \text{ keV})$ . En effet, les carottes ne sont pas nécessairement concassées et homogènes et différentes hétérogénéités peuvent apparaître et fausser les teneurs calculées. Cependant, comme démontré dans le chapitre II, la combinaison des deux indicateurs à 92 keV et 98 keV permettra à l'opérateur d'ORANO Mining de valider, ou non, la teneur en uranium calculée. Ainsi, l'étape de concassage et d'homogénéisation de la carotte peut être jugée non nécessaire,

Pour finir, l'utilisation de la mesure neutronique active, cœur de métier du Laboratoire de Mesures Nucléaires, dans le cadre de la mesure en puits de forage, ou sur bande convoyeuse, est une perspective ambitieuse mais très intéressante afin d'améliorer les méthodes de mesure actuelles.

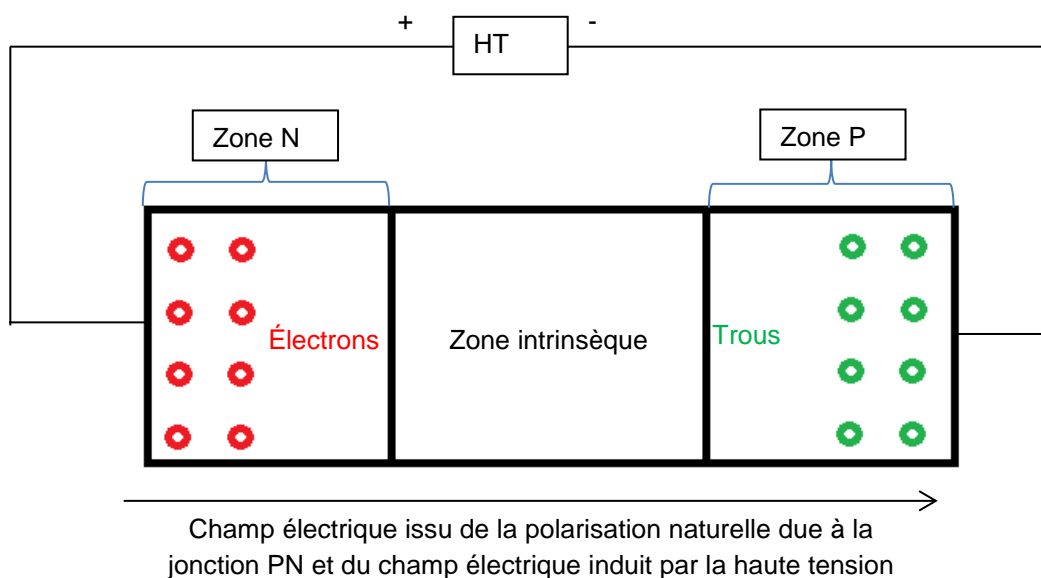


# ANNEXES

## A.1 Détecteur Germanium Hyper-Pur (GeHP)

Le germanium est un semi-conducteur, ce qui signifie qu'un simple rayonnement ( $\gamma$ , X,  $\beta$ ) le traversant va permettre de promouvoir les électrons depuis sa bande de valence jusqu'à sa bande de conduction. Il suffit donc qu'un rayonnement ait une énergie suffisante, supérieur au gap entre la bande de conduction et la bande de valence pour créer un signal si un champ électrique suffisant est appliqué aux bornes du cristal (grâce à la **haute tension**) afin de collecter ces charges. Néanmoins, à température ambiante, le gap du germanium est de 0.67 eV et certains électrons vont pouvoir migrer vers la bande de conduction par simple agitation thermique. Il est donc nécessaire de refroidir le germanium grâce à de **l'azote liquide ou un cryo-générateur électrique** afin d'obtenir une température de refroidissement de cristal d'environ 77 K. Ce refroidissement va permettre de limiter le courant de fuite due à l'agitation thermique qui devient alors négligeable face au courant induit par un rayonnement traversant le germanium.

Notons de plus que certaines zones du cristal sont dopées afin d'améliorer la conductivité de celui-ci en insérant de nouveaux atomes dans le réseau cristallin. On distingue deux types de dopage : le « dopage N » qui consiste à intégrer des atomes dans le milieu qui auront tendance à donner des électrons (tel que le phosphore, l'arsenic ou l'antimoine) ou le « dopage P » qui consiste à intégrer à l'inverse un atome ayant une lacune électronique (aluminium, bore, indium, gallium), appelé « trou ». Grâce à ce dopage, un champ électrique apparaît entre la région ayant gagné des trous et la région ayant gagné des électrons. De manière simplifiée le cristal de germanium est ainsi constitué de trois zones : une zone N (électrons en majorité), une zone P (trous en majorité) et une zone intrinsèque où les nombres d'électrons et de trous sont équivalents. Le cristal est polarisé en inverse afin de s'assurer que seuls les porteurs minoritaires (trous dans la zone N et électrons dans la zone P) circulent. Dans ce cas, l'intensité du signal créé dans le germanium est faible et seul un rayonnement incident traversant le germanium peut créer un signal proportionnel à l'énergie déposé. Dans le cas opposé, en polarisation directe, les porteurs majoritaires (trous dans la zone P et électrons dans la zone N) migrent et induisent un signal proportionnel à la tension appliquée qui noie le signal dû au rayonnement. Le graphique récapitule le fonctionnement d'une jonction PN.



**Figure 121 : Schéma explicatif d'une jonction PN**

Notons que les différents dopants implémentés aux extrémités du cristal induisent des « zones mortes » (endroit du cristal où un rayonnement incident ne sera pas détecté). Dès lors, il est nécessaire de doper fortement ces zones pour avoir des zones mortes les plus petites possibles. L'énergie moyenne pour créer une paire électron-trou est de quelque eV, ce qui signifie que l'intensité du courant induit par un

rayonnement de quelques keV est très faible et doit être amplifiée pour permettre une étude spectroscopique. De plus, la mobilité des électrons et des trous dans un semi-conducteur n'est pas la même (pour le germanium :  $V_{\text{Électron}} = 3900 \text{ cm}^2/(\text{V.s})$  et  $V_{\text{Trou}} = 1900 \text{ cm}^2/(\text{V.s})$  à 300 K). Dans le cas de la détection d'un rayonnement incident, les électrons sont d'abord collectés, puis les trous. Ce phénomène induit une déformation des raies normalement gaussiennes du spectre  $\gamma$  dans certains types de semi-conducteur tels que les détecteurs CdTe où la mobilité des trous est mauvaise (ils sont piégés pendant le transport). Cette déformation des pics se présente sous la forme d'une traîne vers les basses énergies qui est aussi observée dans les cristaux de germanium de volume important où la distance entre la création des paires électrons-trous et leur collection (par l'anode et la cathode) est grande (recombinaisons).

Historiquement, les cristaux de germanium devaient être dopés avec du Lithium (Ge(Li)) afin de combler les lacunes interstitielles dans le réseau cristallin. Mais depuis plusieurs années, les améliorations technologiques permettent la formation de cristaux de germaniums hyper-purs qui peuvent être utilisés même après réchauffement (les atomes de lithium ayant tendance à migrer après réchauffement dans un Ge(Li)).

**Remarque :** D'autres semi-conducteurs sont utilisés pour des études spectroscopiques comme les détecteurs à base de silicium, de tellure de cadmium (CdTe), d'iodure mercurique ( $\text{HgI}_2$ ) ou d'arséniure de gallium (AsGa). Ces types de semi-conducteurs ne sont à l'heure actuelle que de très faibles volumes en raison des difficultés technologiques liées à leurs cristaux et ne permettent donc que des mesures de rayonnement incident de très faible énergie. Néanmoins, ils pourront être utilisés lors de l'étude sur les raies de fluorescence XL de l'uranium (moins de 20 keV, voir § 1.4.2).

Un **préamplificateur** est directement connecté en sortie de cristal, afin de transformer le courant de sortie dû au rayonnement incident en tension. Il assure aussi l'adaptation d'impédance du signal de sortie de cristal (forte impédance) à celle de l'électronique de traitement du signal (faible impédance), qui peut ainsi être déportée.

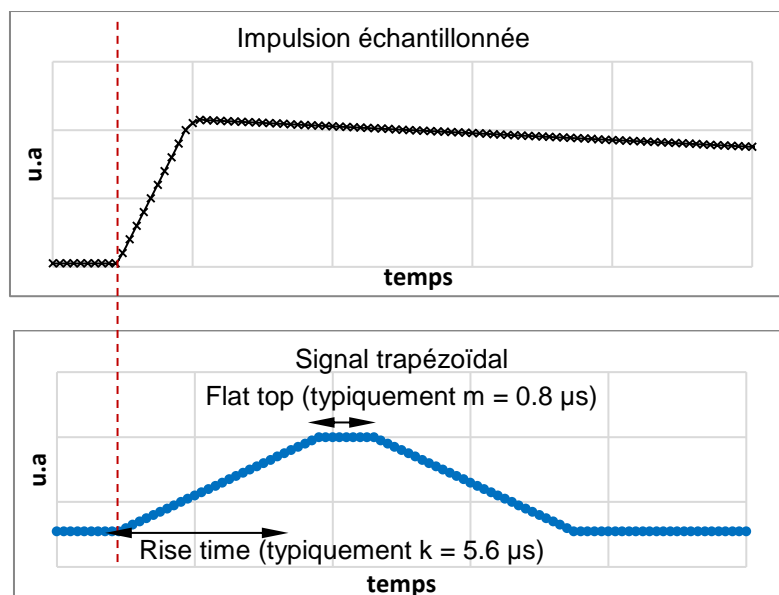
#### Le système d'acquisition et de traitement analogique de l'impulsion :

Le préamplificateur est connecté à un système d'acquisition (amplificateur - analyseur multicanaux - ordinateur) qui permet le traitement du signal afin de réaliser le spectre gamma de l'échantillon. L'**amplificateur** permet une mise en forme du signal et d'augmenter son amplitude afin qu'il soit traité par le **convertisseur analogique-numérique** (CAN) et l'**analyseur multicanaux**. Ce dernier permet de répartir les impulsions sur 1024, 2048, 4096 ou encore 8192 canaux en fonction de l'amplitude de celles-ci. Une calibration en énergie est réalisée grâce à des sources étalons. Les détecteurs au germanium présentent la meilleure résolution de tous les détecteurs courants de spectrométrie gamma, typiquement de l'ordre de 0.6 keV (largeur à mi-hauteur) à 122 keV (source de  $^{57}\text{Co}$ ).

#### Le système d'acquisition et de traitement numérique de l'impulsion :

Les récents développements liés au traitement numérique du signal permettent de traiter numériquement l'impulsion en sortie du préamplificateur. Dans ce cadre, une électronique numérique est connectée au préamplificateur et joue à la fois le rôle de l'amplificateur, du convertisseur analogique-numérique et de l'analyseur multicanaux grâce à l'utilisation de différents filtres numériques. La première étape consiste, tout comme dans le cas analogique, à transformer le signal issu du Ge qui est un courant en tension et à l'amplifier. Ce signal de préamplificateur est ensuite numérisé par un flash-ADC. Ce dernier travaille en continu dans le DSP et alimente un trigger digital qui permet d'identifier l'arrivée du signal et d'ordonner sa mise en mémoire sous forme d'un oscillogramme aussi appelé « trace ». Dès lors, ce signal échantillonné peut être traité numériquement par le DSP (*Digital Signal processor*) avec un filtre trapézoïdal, caractérisé par un temps de montée (Rise time de durée k) et de descente identiques, et par un plateau (Flat top de durée m) permettant au système d'acquisition de coder l'impulsion de manière précise (voir Figure suivante) [61], [62]. Ces deux constantes peuvent être choisies par l'opérateur afin de traiter au mieux l'impulsion et privilégier la résolution en énergie ou le taux de comptage. En effet, en augmentant ces

constantes, la hauteur de l'impulsion codée avec plus de précision, améliorant ainsi la résolution en énergie (LTMH) mais augmentant significativement le temps de traitement de l'impulsion et donc le temps mort du système de détection. Dès lors, connaissant l'amplitude de l'impulsion codée, l'électronique numérique incrémente le canal du spectre correspondant. Il est à noter que le DSP gère automatiquement l'ajustement du pole zéro. L'avantage du traitement digital est que, comme le signal est numérisé au vol, on n'a pas le temps mort lié au délai de lecture d'un ADC en analogique. Par contre, le traitement de signaux empilés plus rapprochés que  $k+m$  nécessite un traitement par déconvolution quelque peu délicat. De ce fait, on considère en général  $k+m$  comme le temps de traitement lié au signal.



**Figure 122 : Impulsion d'entrée d'un détecteur GeHP et mise en forme trapézoïdale. Typiquement, durant la thèse, Rise Time = Fall time = 5.6  $\mu$ s et Flat top = 0.8  $\mu$ s.**

Le principal inconvénient de ce type de chaîne de détection (détecteur + chaîne d'acquisition) est son prix compris typiquement entre 15 000 € pour les moins chers (petit cristal, résolution moyenne) à plus de 100 000 € (refroidissement par Cryo-pulse, haute résolution, cristal volumineux).

L'un des principaux fournisseurs, MIRION Technologies (Canberra), commercialise différentes géométries de détecteurs dopés différemment ce qui influence leur résolution énergétique, leur efficacité de détection et leur utilisation (voir Figure 123) :

- Les détecteurs germanium de type **planaire** (*LEGe – Low Energie Germanium detector, Ultra LEGe*). Leur cristal est de forme cylindrique et de faible épaisseur. Historiquement, ce sont les premiers détecteurs au germanium à être développés de par leur forme simple. Ils sont souvent utilisés dans des mesures de rayonnements de faibles énergies à cause de la faible épaisseur de leur cristal et de leur très bonne efficacité de détection à faibles énergies. On note une résolution en énergie à 122 keV d'environ 0.5 à 0.6 keV et une gamme d'utilisation comprise entre quelques eV à 1 MeV (pour l'*Ultra LEGe*).
- Les détecteurs germanium de type **coaxial** (*Coaxial Ge, REGe – Reverse Electrode Ge detector, XtRa – Extended Range Coaxial Ge Detector*). Leur cristal est de forme cylindrique avec un vide en son centre : cette géométrie permet d'augmenter l'épaisseur du cristal est ainsi de mesurer des rayonnements de plus hautes énergies. Son efficacité de détection à basse énergie et sa résolution sont moins bonnes qu'un détecteur planaire. La résolution à 122 keV est d'environ 1 keV pour ce type de détecteur. Un *Coaxial Ge* est dopé N sur la face externe et P sur la face interne du cristal alors qu'un *REGe* est dopé N sur la face interne et P sur la face externe, ce qui lui permet d'être plus résistant aux dommages neutroniques. En effet, les dommages neutroniques induisent un piégeage des trous dans le cristal (création de lacunes dans le germanium). Grâce à l'inversion

des zones dopées dans un REGe, on diminue le trajet nécessaire aux trous pour atteindre la zone dopée P et donc la probabilité de perte de signal.

- Le détecteur germanium de type **BEGe** (*Broad Energie Germanium Detector*). Ce détecteur a été développé afin de faire coïncider la bonne efficacité de détection d'un détecteur coaxial et la très bonne résolution du détecteur planaire. Son cristal est de forme cylindrique et est dopé sur le contour, ce qui lui permet d'avoir une bonne résolution énergétique (en moyenne 0.7 keV à 122 keV) et une efficacité de détection comprise entre 10 keV et 3 MeV. De plus, afin de ne pas perdre en efficacité de détection à basse énergie, une fenêtre d'entrée en béryllium peut être utilisée. Dans le cas contraire, c'est-à-dire s'il n'est pas nécessaire d'étudier des rayonnements de très faibles énergies, une fenêtre plus solide en aluminium est couramment utilisée.
- Les détecteurs germanium de type *Well* (Puits) ou *SAGe Well* (*Small Anode*) de forme coaxiale « inversés » permettent une mesure sous  $4\pi$  stéradian pour un échantillon émetteur  $\gamma$  placé dans le puits. Les détecteurs type *SAGe Well* disposent d'une plus petite anode que le détecteur type *Well* mais sur la totalité du cristal, ce qui leur permet d'avoir une haute résolution et une grande efficacité de détection.

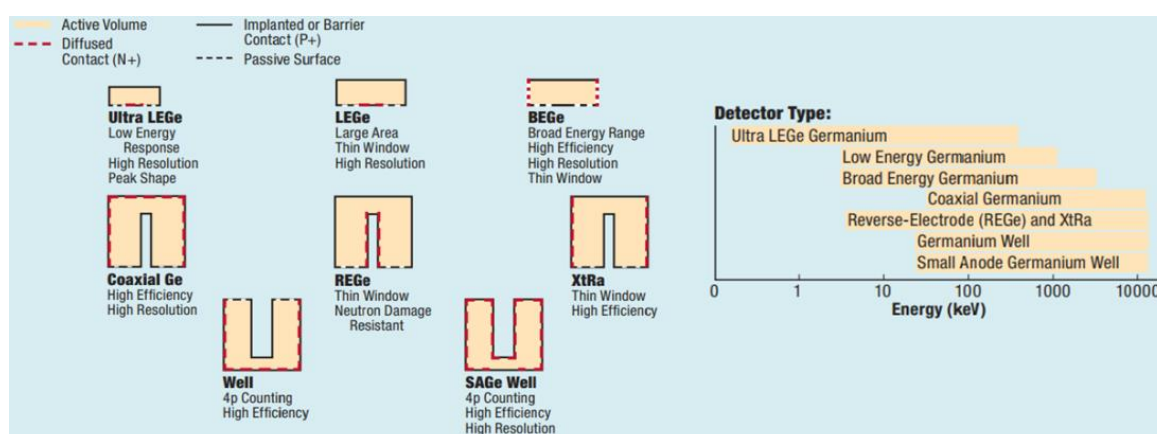


Figure 123 : Différents type de détecteurs germanium commercialisés par Canberra



## A.2 Analyse en composante principales

Les spectres obtenus lors d'une mesure SGA sont une combinaison linéaire du spectre de l'uranium, du thorium et du potassium. Cependant, afin de corriger les différents effets d'atténuation qui interviennent lors de la mesure (altitude de vols différents, auto-absorption dans le sol, bruit de fond...) l'analyse en composantes principales (ACP [63]) est utilisée.

L'ACP, de manière simplifiée, a pour objectif de trouver de nouvelles composantes spectrales afin de reconstituer le spectre mesuré. Il sert en outre à décomposer les mesures avec de nouvelles variables qui offrent une corrélation minium dans un espace de dimension réduite par rapport à la dimension initiale du problème.

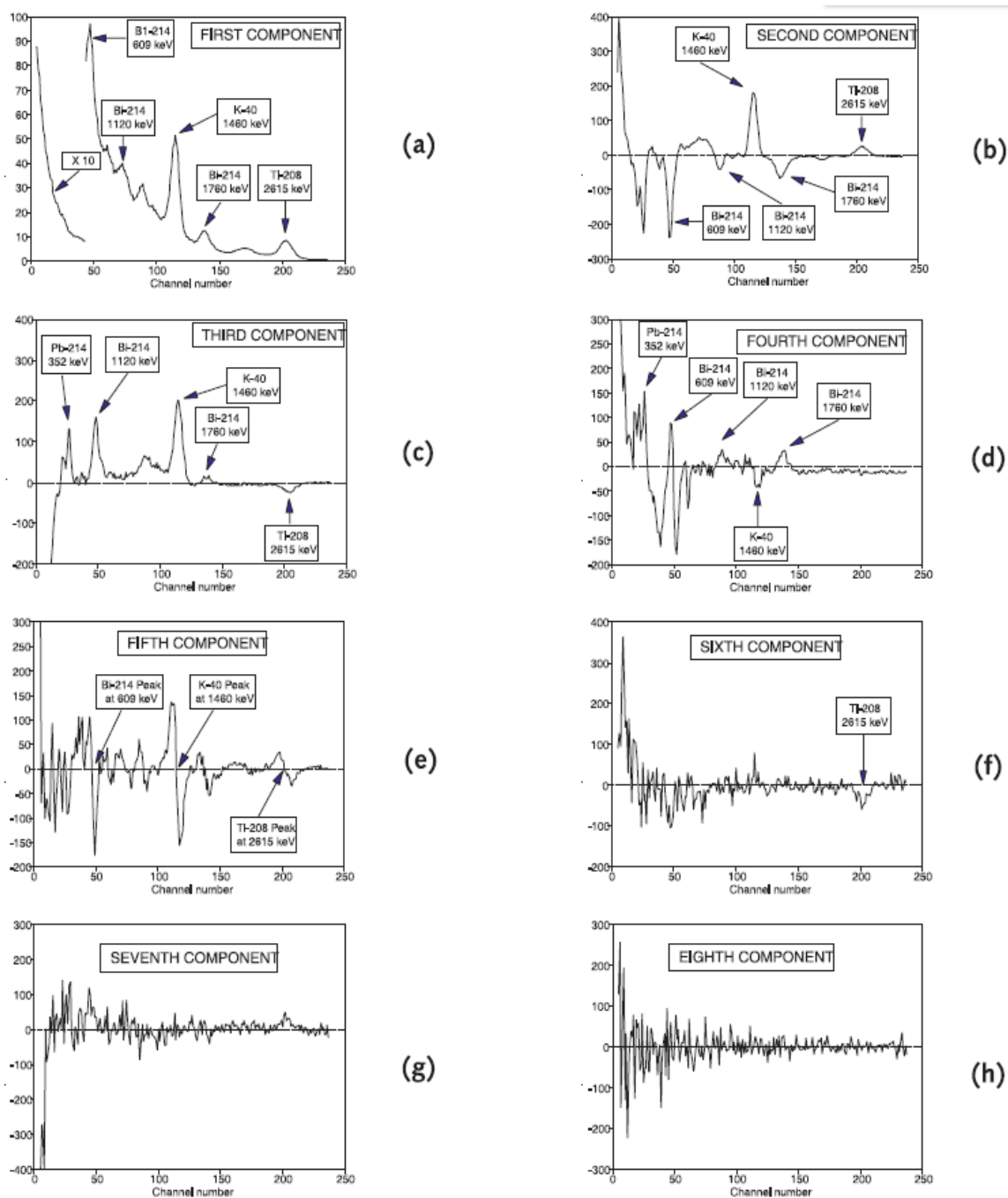
Prenons l'exemple des mesures réalisées au Nevada par Newmont Exploration et analysées par J.Hovgaard et R.L Grasty [29]. Ces mesures ont permis d'obtenir 8 nouvelles composantes spectrales (Figure 124) qui comportent chacune une information plus ou moins importante de la zone cartographiée. De plus, dans son principe, l'ACP permet d'obtenir des composantes indépendantes entre elles.

En règle générale, on peut reconstituer la majorité des mesures par les trois premières composantes trouvées par l'ACP :

- 1<sup>ère</sup> composante **(a)** : spectre moyen mesuré sur tous les échantillons.
- 2<sup>ème</sup> composante **(b)** : spectre qui représente la plus grande partie du signal après élimination de la première composante et qui correspond en grande partie à la variation de la concentration en radon sur le spectre mesuré (raies du  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$  négatives et  $^{40}\text{K}$  et  $^{208}\text{Tl}$  positives). En combinant ce spectre avec la 1<sup>ère</sup> composante on peut ainsi reconstituer des spectres ayant différentes concentrations en radon.
- 3<sup>ème</sup> composante **(c)** : contribution du thorium et du potassium dans les spectres (raie du  $^{40}\text{K}$  positive et  $^{208}\text{Tl}$  négative). La combinaison de ce spectre avec les deux premières composantes permet de reconstituer des spectres ayant des concentrations en thorium, uranium et potassium différentes.

Cependant, on peut noter que 5 autres composantes sont aussi utilisées pour corriger et observer différents phénomènes physiques ayant un plus faible impact sur les spectres :

- 4<sup>ème</sup> composante **(d)** : effets d'atténuation dans l'air. Les rayonnements  $\gamma$  émis par le radon dans l'air ont un trajet plus court et ne subissent pas d'auto-absorption par rapport à ceux émis par l'uranium dans le sol. Les rayonnements  $\gamma$  à 609 keV et 1760 keV émis par le  $^{214}\text{Bi}$  ne sont donc pas soumis à la même atténuation suivant la concentration en radon dans l'air. Cette composante combinée avec la 2<sup>ème</sup> composante **(b)** permet de reconstituer des spectres ayant des proportions en radon dans l'air différentes.
- 5<sup>ème</sup>, 6<sup>ème</sup>, 7<sup>ème</sup> et 8<sup>ème</sup> composantes **(e) (f) (g) (h)** : différents effets mineurs tels que les bruits induits par la chaîne de mesure ou encore la statistique de comptage.



**Figure 124 : 8 composantes spectrales calculé grâce à l'ACP sur des mesures aéroportées réalisées au Nevada [29]**

Grâce à ces 8 composantes, il est possible par combinaison linéaire de reconstituer le spectre d'origine et d'en tirer les différentes teneurs recherchées sans connaître l'altitude de vol ou les différents bruits de fond intervenant lors de la mesure.

## A.3 Rendement de fluorescence et efficacité de détection

### - Géométrie de mesure de référence

Les différentes efficacités de détection lors de la mesure des échantillons de Zoovch Ovo0 ont été calculées grâce au logiciel ISOCS (voir annexe A.4). Les différentes teneurs étudiées étant inférieures à 20 000 ppm<sub>U</sub>, aucune correction des effets induits par les phénomènes d'auto-atténuation n'est à réaliser sur ce type de mesure.

De plus, il a été nécessaire de calculer un rendement de fluorescence pour chaque échantillon aux énergies de 185 keV (<sup>235</sup>U et <sup>226</sup>Ra), 242 keV (<sup>214</sup>Pb), 295 keV (<sup>214</sup>Pb), 352 keV (<sup>214</sup>Pb), 609 keV (<sup>214</sup>Bi) et 1120 keV (<sup>214</sup>Bi). Comme chaque échantillon a une densité et une hauteur de remplissage différentes, 9 densités (de 1.2 à 1.6 par pas de 0.5) et 6 hauteurs de remplissage (de 1 à 6 cm) ont été modélisées et une analyse multiparamétrique a été réalisée grâce au logiciel GReMLin [58] (voir annexe A.7) afin d'obtenir pour n'importe quelle hauteur et densité d'échantillon la valeur du rendement de fluorescence dû à chacune de ces 6 émissions. Le rendement de fluorescence de référence est celui calculé par MCNP. Nous disposons ainsi de 6x9 couples (densité, hauteur) pour les 6 énergies étudiées afin de mener cette étude multiparamétrique. Chaque rendement de fluorescence a été calculé pour un échantillon de 1 000 ppm<sub>U</sub> et se repose sur la géométrie de mesure de la Figure 125.

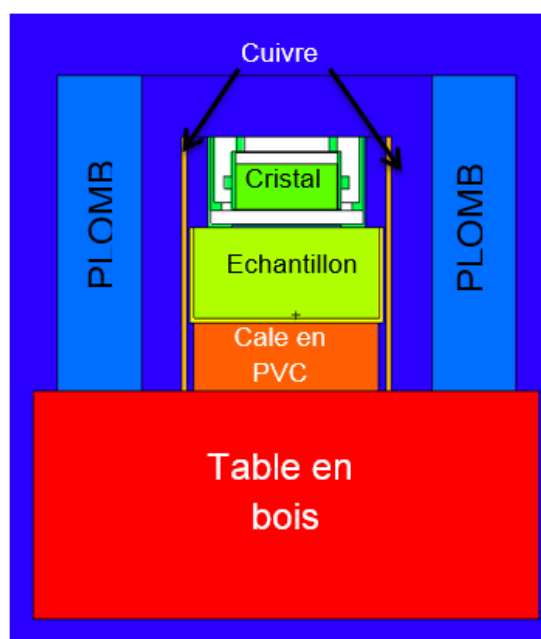


Figure 125 : Géométrie de mesure de référence

On a cherché 7 coefficients tel que :

$$\eta_{flu0}(E) = a_0 + a_1 \times h + a_2 \times d + a_3 \times h \times d + a_4 \times h^2 + a_5 \times h^2 \times d + a_6 \times d^2 + a_7 \times h \times d^2$$

Les valeurs des coefficients trouvées par le logiciel GReMLin sont représentées dans le tableau suivant pour chaque énergie étudiée

**Tableau 44 : Valeurs des coefficients  $a_i$  de  $\eta_{fluor}(E)$** 

| Coefficient | 185 keV                | 242 keV                | 295 keV                | 352 keV                | 609 keV                | 1120 keV               |
|-------------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|
| <b>a0</b>   | $-4.53 \times 10^{-7}$ | $4.52 \times 10^{-7}$  | $5.54 \times 10^{-7}$  | $3.35 \times 10^{-7}$  | $-4.10 \times 10^{-7}$ | $3.34 \times 10^{-7}$  |
| <b>a1</b>   | $3.46 \times 10^{-7}$  | $-5.50 \times 10^{-7}$ | $-3.34 \times 10^{-7}$ | $-1.38 \times 10^{-7}$ | $2.37 \times 10^{-8}$  | $-1.07 \times 10^{-6}$ |
| <b>a2</b>   | $9.98 \times 10^{-7}$  | $-1.62 \times 10^{-7}$ | $-3.85 \times 10^{-7}$ | $-2.62 \times 10^{-7}$ | $7.84 \times 10^{-7}$  | $-1.65 \times 10^{-7}$ |
| <b>a3</b>   | $3.73 \times 10^{-7}$  | $1.34 \times 10^{-6}$  | $9.18 \times 10^{-7}$  | $7.42 \times 10^{-7}$  | $2.69 \times 10^{-7}$  | $1.40 \times 10^{-6}$  |
| <b>a4</b>   | $-1.88 \times 10^{-8}$ | $3.98 \times 10^{-8}$  | $4.50 \times 10^{-8}$  | $1.13 \times 10^{-9}$  | $3.39 \times 10^{-8}$  | $1.31 \times 10^{-7}$  |
| <b>a5</b>   | $-4.20 \times 10^{-8}$ | $-8.15 \times 10^{-8}$ | $-7.62 \times 10^{-8}$ | $-3.70 \times 10^{-8}$ | $-6.09 \times 10^{-8}$ | $-1.19 \times 10^{-7}$ |
| <b>a6</b>   | $-1.96 \times 10^{-7}$ | $7.91 \times 10^{-8}$  | $1.39 \times 10^{-7}$  | $1.45 \times 10^{-7}$  | $-3.16 \times 10^{-7}$ | $-7.43 \times 10^{-8}$ |
| <b>a7</b>   | $7.82 \times 10^{-8}$  | $-1.63 \times 10^{-7}$ | $-2.80 \times 10^{-8}$ | $-4.66 \times 10^{-8}$ | $1.79 \times 10^{-7}$  | $-1.12 \times 10^{-7}$ |

Ces comparaisons permettent de valider la formule  $\eta_{fluor}(E)$  car l'erreur maximale induite par cette méthode sur le rendement de fluorescence est de l'ordre de 10 %. Chaque rendement de fluorescence sera par la suite calculé directement avec cette formule.

Plusieurs tests ont été réalisés pour vérifier la validité de ces 6 formules (une par énergie étudiée). Trois échantillons de Zoovch Ovoos ont été sélectionnés au hasard. Pour chacun d'entre eux, les rendements de fluorescence aux différentes énergies ont été calculés avec la formule précédente et comparés aux rendements de fluorescence issus de simulations MCNP avec les bonnes densités et dimensions de l'échantillon. Les résultats sont présentés dans le tableau suivant.

**Tableau 45 : Comparaison des rendements de fluorescence calculés par MCNP et par la formule  $\eta_{fluor}(E)$** 

| Energie<br>(keV) | Echantillon 1<br>Teneur : 362 ppmu<br>Hauteur : 4.85 cm<br>Densité : 1.33 |                              |                        | Echantillon 2<br>Teneur : 173 ppmu<br>Hauteur : 6.27 cm<br>Densité : 1.54 |                              |                        | Echantillon 3<br>Teneur : 691 ppmu<br>Hauteur : 1.53 cm<br>Densité : 1.45 |                              |                        |
|------------------|---|------------------------------|------------------------|---|------------------------------|------------------------|---|------------------------------|------------------------|
|                  | MCNP<br>$\eta_{fluor}(E)$   | GRemLin<br>$\eta_{fluor}(E)$ | Différence<br>relative | MCNP<br>$\eta_{fluor}(E)$   | GRemLin<br>$\eta_{fluor}(E)$ | Différence<br>relative | MCNP<br>$\eta_{fluor}(E)$   | GRemLin<br>$\eta_{fluor}(E)$ | Différence<br>relative |
| 185              | $3.56 \times 10^{-6}$   | $3.53 \times 10^{-6}$        | <b>-0.84 %</b>         | $4.33 \times 10^{-6}$   | $4.27 \times 10^{-6}$        | <b>-1.39 %</b>         | $2.05 \times 10^{-6}$   | $2.00 \times 10^{-6}$        | <b>-2.44 %</b>         |
| 242              | $3.26 \times 10^{-6}$   | $3.36 \times 10^{-6}$        | <b>3.07 %</b>          | $4.13 \times 10^{-6}$   | $4.11 \times 10^{-6}$        | <b>-0.48 %</b>         | $1.86 \times 10^{-6}$   | $1.81 \times 10^{-6}$        | <b>-2.69 %</b>         |
| 295              | $3.03 \times 10^{-6}$   | $3.02 \times 10^{-6}$        | <b>-0.33 %</b>         | $3.87 \times 10^{-6}$   | $3.80 \times 10^{-6}$        | <b>-1.81 %</b>         | $1.57 \times 10^{-6}$   | $1.57 \times 10^{-6}$        | <b>0.00 %</b>          |
| 352              | $2.94 \times 10^{-6}$   | $2.83 \times 10^{-6}$        | <b>-3.74 %</b>         | $3.74 \times 10^{-6}$   | $3.69 \times 10^{-6}$        | <b>-1.34 %</b>         | $1.51 \times 10^{-6}$   | $1.42 \times 10^{-6}$        | <b>-5.96 %</b>         |
| 609              | $2.36 \times 10^{-6}$   | $2.35 \times 10^{-6}$        | <b>-0.42 %</b>         | $3.17 \times 10^{-6}$   | $3.10 \times 10^{-6}$        | <b>-2.21 %</b>         | $1.20 \times 10^{-6}$   | $1.14 \times 10^{-6}$        | <b>-5.00 %</b>         |
| 1120             | $2.43 \times 10^{-6}$   | $2.22 \times 10^{-6}$        | <b>-8.64 %</b>         | $2.90 \times 10^{-6}$   | $2.98 \times 10^{-6}$        | <b>2.76 %</b>          | $9.72 \times 10^{-7}$   | $9.49 \times 10^{-7}$        | <b>-2.37 %</b>         |

Par ailleurs, lorsque l'on utilise seulement ces 6 raies principales pour quantifier l'auto-fluorescence, on sous-estime le terme source dû aux autres raies du spectre gamma. Il faut donc faire intervenir un facteur correctif qui va permettre de quantifier via les 6 raies présentes dans le spectre le terme source total de fluorescence. Ce facteur correctif, noté F, représente le ratio entre l'auto-fluorescence induite par les 6

raies étudiées et l'auto-fluorescence induite par la totalité des émissions présentes dans les chaînes de filiation de l' $^{238}\text{U}$  et de l' $^{235}\text{U}$  :

$$F = \frac{S_n^{flu-98keV} (6 \text{ raies principales})}{S_n^{flu-98keV} (\text{Toutes les raies des chaînes } ^{235}\text{U et } ^{238}\text{U})}$$

Avec  $S_n^{flu}$  : contribution de la fluorescence dans l'aire nette de la raie à 98 keV

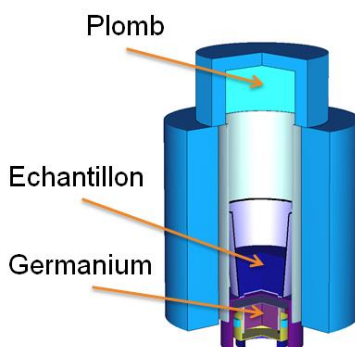
F a été étudié par simulation pour différentes valeurs de densité, hauteur de remplissage et teneur en uranium. Pour une densité de 1.4 et une hauteur de remplissage de 6 cm, F est égal à **76 %** pour un échantillon de 1 000 ppm<sub>U</sub> et **78 %** pour 10 000 ppm<sub>U</sub>. La teneur en uranium influence donc peu le facteur F. Lorsque l'on fixe la hauteur à 6 cm et la teneur en uranium à 1 000 ppm<sub>U</sub>, F vaut **75 %** pour une densité de 1.2, **76 %** pour une densité de 1.4 et **74 %** pour une densité de 1.6. La densité influence donc aussi très peu la valeur du facteur F. Le dernier effet étudié est la hauteur de remplissage, voir tableau suivant.

**Tableau 46 : Effet de la hauteur de remplissage sur le coefficient correctif F (densité d'échantillon fixée à 1.4 et teneur en uranium à 1 000 ppm<sub>U</sub>).**

| Hauteur (cm) | 1    | 2    | 3    | 4    | 5    | 6    |
|--------------|------|------|------|------|------|------|
| F            | 81 % | 76 % | 78 % | 80 % | 77 % | 76 % |

Le facteur F restant relativement constant, il sera pris égal à 78 % pour cette étude (valeur moyenne), mais à l'avenir il pourra être recalculé pour une hauteur de remplissage, une densité et une teneur en uranium adaptées suivant l'échantillon étudié. Au vu des fluctuations du facteur F, on considérera une incertitude de 5 % sur sa valeur dans le cas de l'étude sur l'incertitude de mesure abordée au § II.7.3.

- Nouvelle géométrie de mesure au Laboratoire de Mesures Nucléaires



**Figure 126 : Nouvelle géométrie de mesures**

Dans le cas des mesures menées sur la nouvelle géométrie au laboratoire de Mesures Nucléaires, les efficacités de détection ont été calculées grâce à MCNP car la modélisation du détecteur FALCON a été validée suite à des mesures menées en laboratoire. Par exemple, pour calculer l'efficacité de détection à 92 keV il suffit de simuler l'émission de rayonnements gamma d'énergie 92 keV à l'intérieur de l'échantillon et d'utiliser le « tally F8 » de MCNP (histogramme des dépôts d'énergie) dans le cristal de germanium, la valeur du canal à 92 keV est directement égale à l'efficacité du détecteur à cette même énergie, c'est-à-dire au nombre de coups dans la raie par photon de 92 keV émis dans l'échantillon. Une étude multiparamétrique, menée ici encore avec le logiciel GReMLin, a été menée et a permis de lier la valeur des différentes efficacités de détection simulées à 92 keV avec la hauteur, la densité et la teneur en uranium des échantillons étudiées. Notons que, contrairement à la première géométrie de mesure, la plage des teneurs en uranium analysée est plus grande (de 0 à 100 000 ppm<sub>U</sub> au lieu de 0 à 20 000 ppm<sub>U</sub>). Il a été décidé d'incorporer cette teneur dans l'analyse multiparamétrique menée avec plus de 700 simulations afin de prendre en compte les effets d'auto-atténuation de l'uranium.

$$Eff_{92\text{ keV}} = c0 + c1 \times h + c2 \times Cm_U \times d + c3 \times h \times Cm_U + c4 \times d \times h + c5 \times h \times d \times Cm_U + c6 \times h \times Cm_U^2 + c7 \times d^2 + c8 \times d^2 \times h + c9 \times h^2 + c10 \times h^2 \times Cm_U + c11 \times h^2 \times d$$

**Tableau 47 : Effet de la hauteur de remplissage sur le coefficient correctif F (densité d'échantillon fixée à 1.4 et teneur en uranium à 1 000 ppm<sub>U</sub>).**

| <i>Efficacité de détection à 92 keV</i> |                          |            |                          |
|---|--------------------------|------------|--------------------------|
| <i>c0</i>                               | 1.16 x 10 <sup>-1</sup>  | <i>c6</i>  | 5.44 x 10 <sup>-14</sup> |
| <i>c1</i>                               | -1.64 x 10 <sup>-2</sup> | <i>c7</i>  | -2.29 x 10 <sup>-3</sup> |
| <i>c2</i>                               | -7.03 x 10 <sup>-8</sup> | <i>c8</i>  | 8.94 x 10 <sup>-4</sup>  |
| <i>c3</i>                               | -3.62 x 10 <sup>-8</sup> | <i>c9</i>  | 9.13 x 10 <sup>-4</sup>  |
| <i>c4</i>                               | -4.65 x 10 <sup>-3</sup> | <i>c10</i> | 2.44 x 10 <sup>-9</sup>  |
| <i>c5</i>                               | 9.12 x 10 <sup>-9</sup>  | <i>c11</i> | 2.44 x 10 <sup>-4</sup>  |

De la même manière que précédemment, un rendement d'auto-fluorescence a été calculé pour chaque échantillon aux énergies de 185 keV (<sup>235</sup>U et <sup>226</sup>Ra), 242 keV (<sup>214</sup>Pb), 295 keV (<sup>214</sup>Pb), 352 keV (<sup>214</sup>Pb), 609 keV (<sup>214</sup>Bi) et 1120 keV (<sup>214</sup>Bi). Comme chaque échantillon a une densité et une hauteur de remplissage différentes, 9 densités (de 1.0 à 1.6 par pas de 0.1) et 9 hauteurs de remplissage (de 1 à 9 cm) ont été modélisées et une analyse multiparamétrique a été réalisée grâce au logiciel GReMLin (voir annexe A.7) afin d'obtenir pour n'importe quelle hauteur et densité d'échantillon la valeur du rendement de fluorescence dû à chacune de ces 6 émissions. Néanmoins, contrairement à la première géométrie de mesure, la plage des teneurs en uranium analysée est plus grande (de 0 à 100 000 ppm<sub>U</sub> au lieu de 0 à 20 000 ppm<sub>U</sub>). Le rendement de fluorescence dépendant de la teneur en uranium, il a été décidé d'incorporer cette teneur dans l'analyse multiparamétrique menée avec plus de 700 simulations.

$$\eta_{fluor}(E) = b0 + b1 \times h + b2 \times Cm_U + b3 \times h \times Cm_U + b4 \times h^2 + b5 \times h^2 \times Cm_U + b6 \times h^2 \times Cm_U^2 + b7 \times Cm_U^2 + b8 \times Cm_U^2 \times h$$

Les valeurs des coefficients trouvées par le logiciel GReMLin sont représentées dans le tableau suivant pour chaque énergie étudiée.

**Tableau 48 : Valeurs des coefficients a<sub>i</sub> de η<sub>fluor</sub>(E) pour la nouvelle géométrie de mesure**

| <i>Coefficient</i> | <i>185 keV</i>            | <i>242 keV</i>            | <i>295 keV</i>            | <i>352 keV</i>            | <i>609 keV</i>            | <i>1120 keV</i>           |
|--------------------|---------------------------|---------------------------|---------------------------|---------------------------|---------------------------|---------------------------|
| <i>b0</i>          | 2.41 x 10 <sup>-8</sup>   | 1.92 x 10 <sup>-8</sup>   | 1.60 x 10 <sup>-8</sup>   | 1.32 x 10 <sup>-8</sup>   | 9.14 x 10 <sup>-9</sup>   | 6.13 x 10 <sup>-9</sup>   |
| <i>b1</i>          | -3.53 x 10 <sup>-9</sup>  | -2.25 x 10 <sup>-9</sup>  | -1.63 x 10 <sup>-9</sup>  | -1.10 x 10 <sup>-9</sup>  | -5.72 x 10 <sup>-10</sup> | 2.40 x 10 <sup>-10</sup>  |
| <i>b2</i>          | -3.82 x 10 <sup>-14</sup> | -1.62 x 10 <sup>-14</sup> | -2.13 x 10 <sup>-14</sup> | 0                         | -1.63 x 10 <sup>-14</sup> | 0                         |
| <i>b3</i>          | -1.07 x 10 <sup>-14</sup> | -1.93 x 10 <sup>-14</sup> | -1.75 x 10 <sup>-14</sup> | -2.06 x 10 <sup>-14</sup> | -6.33 x 10 <sup>-15</sup> | -1.72 x 10 <sup>-14</sup> |
| <i>b4</i>          | 1.71 x 10 <sup>-10</sup>  | 8.30 x 10 <sup>-11</sup>  | 4.54 x 10 <sup>-11</sup>  | 1.87 x 10 <sup>-11</sup>  | 0                         | -5.96 x 10 <sup>-11</sup> |
| <i>b5</i>          | 1.19 x 10 <sup>-15</sup>  | 1.85 x 10 <sup>-15</sup>  | 1.74 x 10 <sup>-15</sup>  | 1.76 x 10 <sup>-15</sup>  | 4.67 x 10 <sup>-16</sup>  | 1.52 x 10 <sup>-15</sup>  |
| <i>b6</i>          | -6.35 x 10 <sup>-21</sup> | -9.15 x 10 <sup>-21</sup> | -7.94 x 10 <sup>-21</sup> | -8.40 x 10 <sup>-21</sup> | 1.14 x 10 <sup>-21</sup>  | -6.80 x 10 <sup>-21</sup> |
| <i>b7</i>          | 0                         | -1.04 x 10 <sup>-19</sup> | 0                         | -1.42 x 10 <sup>-19</sup> | 4.47 x 10 <sup>-20</sup>  | -3.99 x 10 <sup>-20</sup> |
| <i>b8</i>          | 7.21 x 10 <sup>-20</sup>  | 1.10 x 10 <sup>-19</sup>  | 8.69 x 10 <sup>-20</sup>  | 1.11 x 10 <sup>-19</sup>  | 0                         | 8.04 x 10 <sup>-20</sup>  |

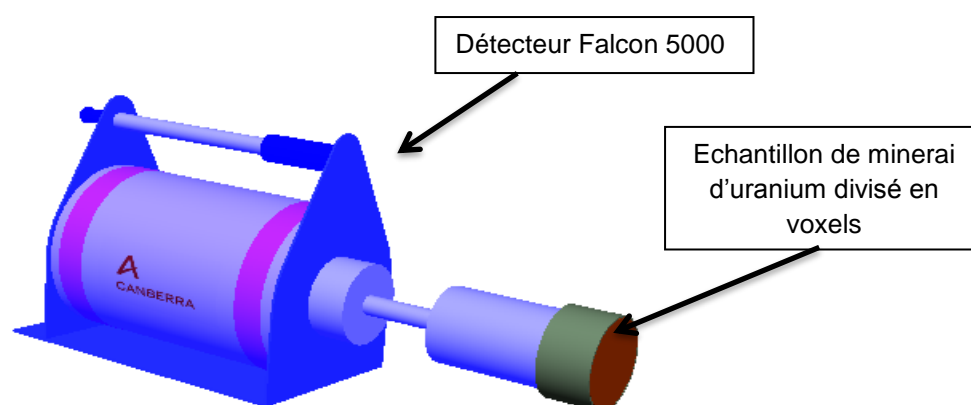
**Remarque :** Comme les rendements de fluorescence et les effectivités de détection dépendent de la teneur en uranium, il a été nécessaire de fonctionner sur un calcul itératif de celle-ci, c'est-à-dire qu'une première teneur est calculée en imposant une teneur initiale (1 000 ppm<sub>U</sub>) dans les équations précédentes, puis cette teneur obtenue et implémentée dans la formule pour calculer une seconde teneur et ainsi de suite jusqu'à faire converger les résultats à 1 % près (en règle générale avec moins de 20 itérations).

Un nouveau facteur F a été estimé dans le cadre de la nouvelle géométrie de mesure. Celui-ci vaut désormais **0.9** (voir § II.6.2.4).

## A.4 ISOCS-Labsocs

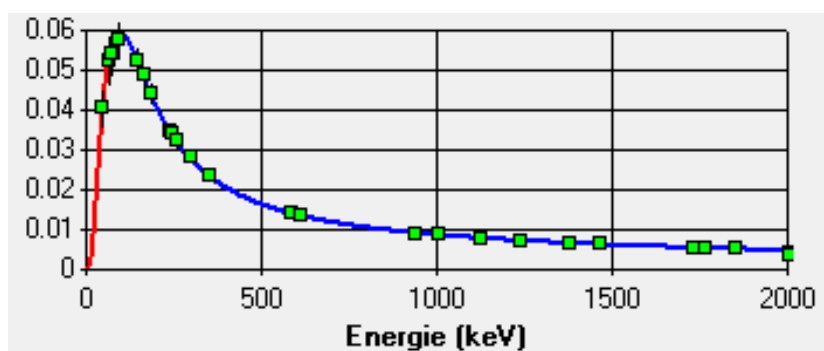
Le logiciel ISOCS/LabSOCS a été développé par la société Canberra. Ce logiciel permet de calculer pour de nombreuses géométries de mesure, l'efficacité de détection liée au détecteur utilisé.

Ce logiciel nécessite de connaître l'efficacité de détection intrinsèque au détecteur (présence de zones mortes, impuretés dans le cristal, épaisseur ou densité...). Cette efficacité est obtenue avec des sources étalons disposées autour du détecteur et est égale au rapport du nombre de particules détectées (nombre de coups dans le spectre gamma dans une raie d'énergie  $E$ ) sur le nombre de particules d'énergie  $E$  atteignant le détecteur. Une fois les caractéristiques du détecteur utilisé renseignées, et la géométrie de mesure implémentée (Figure 127), l'algorithme de ISOCS/LabSOCS divise l'échantillon concassé de minerai d'uranium (terme source), considéré comme homogène, en 1024 voxels. Chaque voxel définit donc une nouvelle source et pour chacun d'entre eux, l'algorithme calcule l'efficacité sans atténuation, le trajet vers le centre du détecteur et les facteurs d'atténuation. Il définit ainsi l'efficacité de détection pour chacun d'entre eux à différentes énergies (renseignées par l'opérateur). L'efficacité de détection « globale » est calculée en moyennant l'efficacité de chaque voxel. Le calcul est réitéré en doublant le nombre de voxels afin de faire converger les résultats à moins de 1 %.



**Figure 127 : Description de la géométrie de mesure avec le logiciel ISOCS/LabSOCS.**

Une fois l'efficacité de détection globale calculée pour différentes énergies, une efficacité de détection continue en énergie peut être calculée et utilisée pour étudier la concentration en uranium du minerai (Figure 128).



**Figure 128 : Efficacité calculée par ISOCS/LabSOCS.**



## A.5 Estimation du gain en temps d'acquisition

Afin d'estimer le gain en temps d'acquisition des deux méthodes développées durant la thèse avec les raies à 92 keV et 98 keV, par rapport à la méthode de référence à 1001 keV, il a été décidé de comparer les incertitudes statistiques relatives aux aires nettes de ces différentes raies, après soustraction du continuum Compton. La figure suivante schématise une raie quelconque du spectre.

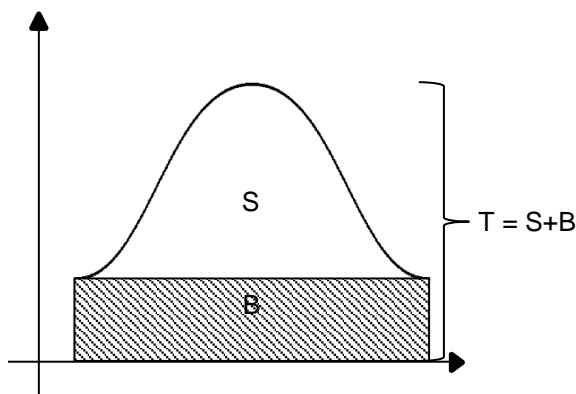


Figure 129 : Schéma de principe de l'obtention de la surface nette  $S$  en soustrayant le continuum Compton  $B$

L'écart type de la surface nette  $S$  est calculé à partir de l'équation suivante :

$$\sigma_s = \sqrt{\sigma_T^2 + \sigma_B^2}$$

Avec,

- $\sigma_T$  : écart type associé à la surface brute ( $T=S+B$ ),
- $\sigma_B$  : écart type associé au continuum Compton ( $B$ ).

Comme  $T$  et  $B$  (nombres de coups) suivent tous les deux une loi de Poisson, alors :

$$\left[ \begin{array}{l} \sigma_T^2 = T = S + B \\ \sigma_B^2 = B. \end{array} \right.$$

Ainsi l'incertitude statistique relative à la mesure de l'aire nette  $S$  vaut :

$$\frac{\sigma_s}{S} = \frac{\sqrt{S + 2B}}{S}$$

Soit  $T_c$  le temps d'acquisition et  $\hat{S} = \frac{S}{T_c}$  et  $\hat{B} = \frac{B}{T_c}$  les taux de comptage associés respectivement à l'aire nette  $S$  et au continuum Compton  $B$  alors :

$$\frac{\sigma_s}{S} = \frac{\sqrt{\hat{S} + 2\hat{B}}}{\hat{S}} \times \frac{1}{\sqrt{T_c}}$$

Dans cette formule, on constate que pour un même échantillon (taux de comptages fixes), tout gain en incertitude statistique relative d'un facteur  $x$  nécessite une augmentation de temps de comptage  $x^2$ .

Pour notre étude, nous souhaitons estimer le gain en temps de mesure lié à l'utilisation des raies à 92 keV ou à 98 keV par rapport à celle à 1001 keV. L'incertitude relative de cette dernière lors des mesures longues effectuées jusqu'à présent est prise comme référence. Considérons les deux aires nettes mesurées

respectivement sur les raies à 92 keV et 1001 keV, par exemple, notées  $S_{92keV}$  et  $S_{1001keV}$ . Soit  $T_{C_{1001}}$  le temps de comptage nécessaire pour obtenir l'incertitude statistique relative de référence sur l'aire nette à 1001 keV,  $\frac{\sigma_{S_{1001keV}}}{S_{1001keV}}$ , et  $T_{C_{92}}$  le temps de comptage nécessaire pour obtenir celle sur l'aire nette à 92 keV,  $\frac{\sigma_{S_{92keV}}}{S_{92keV}}$ . D'après l'équation précédente :

$$\frac{\frac{\sigma_{S_{92keV}}}{S_{92keV}}}{\frac{\sigma_{S_{1001keV}}}{S_{1001keV}}} = \frac{\frac{\sqrt{\hat{S}_{92} + 2\hat{B}_{92}}}{\hat{S}_{92}}}{\frac{\sqrt{\hat{S}_{1001} + 2\hat{B}_{1001}}}{\hat{S}_{1001}}} \times \sqrt{\frac{T_{C_{1001}}}{T_{C_{92}}}}$$

Le gain en temps de comptage recherché est celui pour lequel ce ratio est égal à 1 puisque l'on souhaite avoir la même incertitude statistique relative pour les deux raies, d'où :

$$G_{92} = \frac{T_{C_{1001}}}{T_{C_{92}}} = \left( \frac{\frac{\sqrt{\hat{S}_{1001} + 2\hat{B}_{1001}}}{\hat{S}_{1001}}}{\frac{\sqrt{\hat{S}_{92} + 2\hat{B}_{92}}}{\hat{S}_{92}}} \right)^2$$

De même, gain en temps d'acquisition pour la raie à 98 keV, par rapport à celle de référence à 1001 keV, est les suivant :

$$G_{98} = \frac{T_{C_{1001}}}{T_{C_{98}}} = \left( \frac{\frac{\sigma_{S_{1001keV}}}{S_{1001keV}}}{\frac{\sigma_{S_{98keV}}}{S_{98keV}}} \right)^2$$

Les figures suivantes représentent, pour les mesures ORANO et LMN, ces gains en temps d'acquisition pour chaque échantillon étudié.

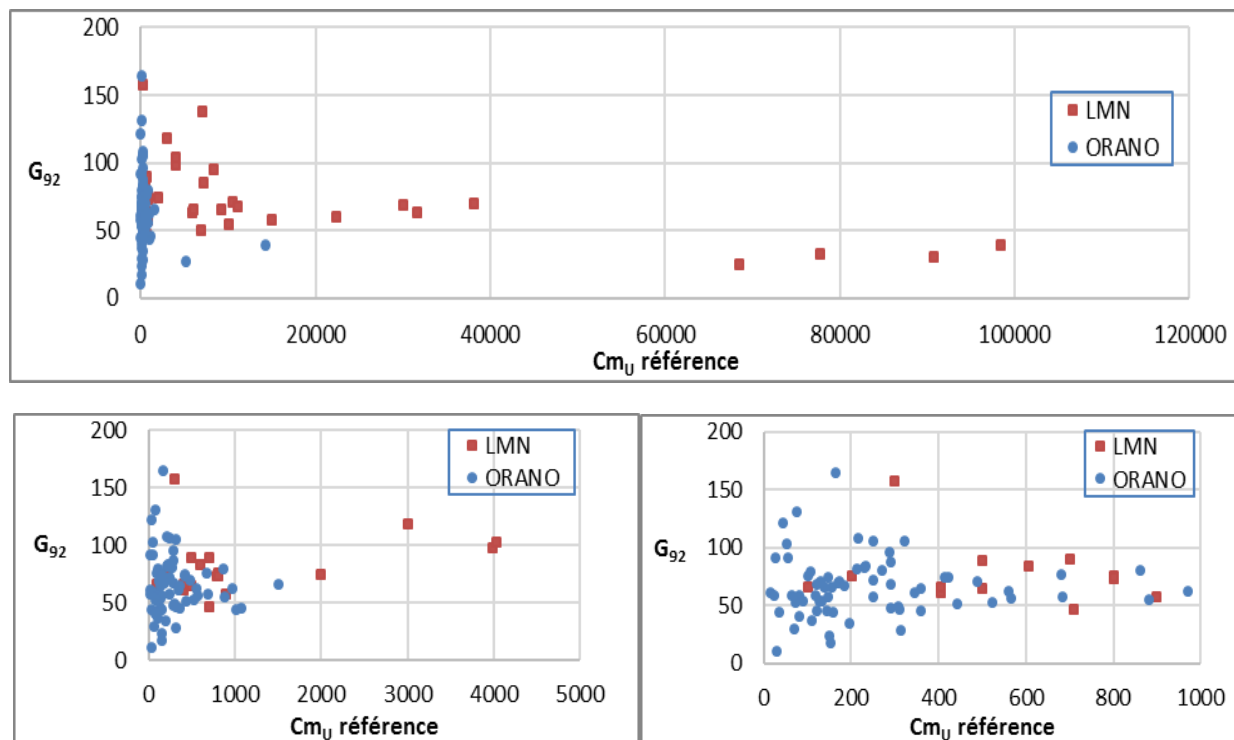
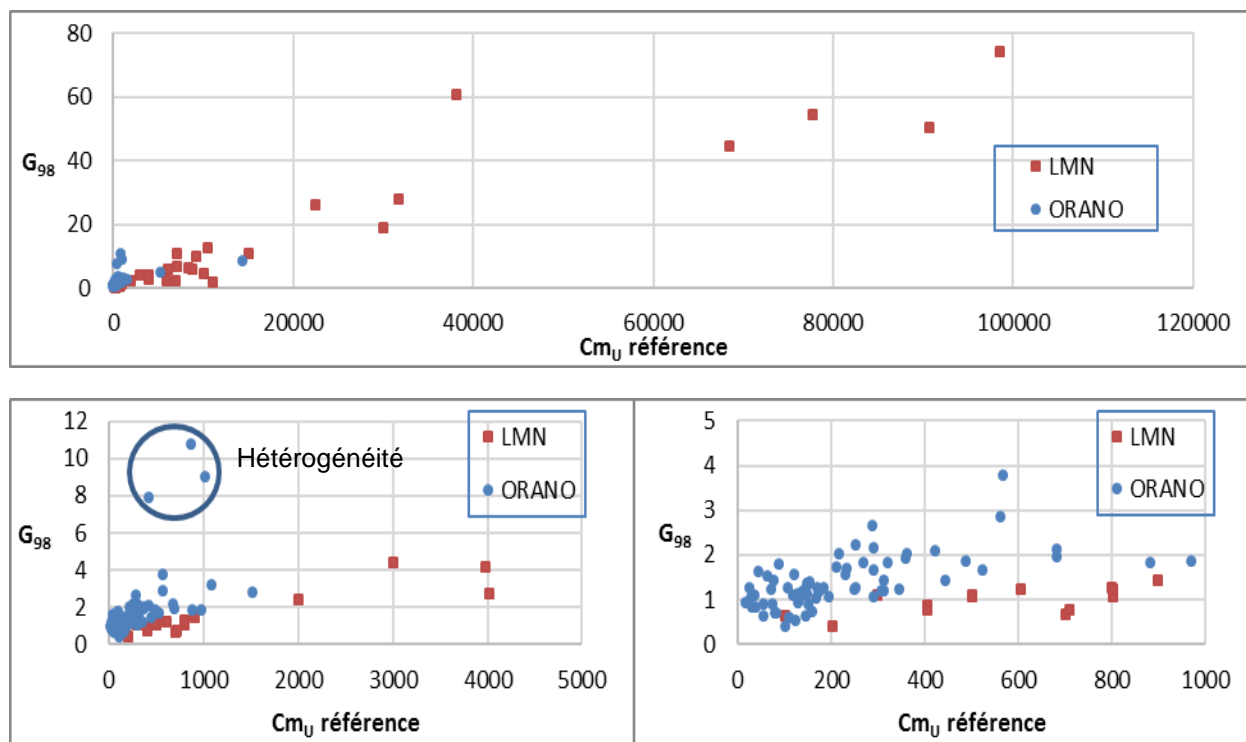


Figure 130 : Gains en temps d'acquisition de la méthode basée sur la raie à 92 keV par rapport à la méthode de référence basée sur la raie à 1001 keV, pour les échantillons mesurés par ORANO et au LMN



**Figure 131 : Gains en temps d'acquisition de la méthode basée sur la raie à 92 keV par rapport à la méthode de référence basée sur la raie à 1001 keV, pour les échantillons mesurés par ORANO et au LMN**

Sur une plage entre 0 et 5000 ppm<sub>U</sub>, les gains moyens sont d'environ  $\langle G_{92} \rangle = 70$  et  $\langle G_{98} \rangle = 2$ . Cependant, ces gains varient en fonction de l'échantillon étudié (densité, hauteur, teneur en uranium, déséquilibre radioactif, hétérogénéité). Par exemple, un fort déséquilibre ( $U/Rn < 1$ ) conduit à « noyer » les raies à 92 et 98 keV dans un continuum Compton très important dû aux radioéléments du bas de la chaîne de l'uranium 238 ( $^{214}Pb$  et  $^{214}Bi$ ) et donc à diminuer le gain en temps d'acquisition. D'autre part, pour  $Cm_U(98 \text{ keV})$ , aucun gain n'est observé aux très faibles teneurs en uranium (moins de 200 ppm<sub>U</sub>) car l'auto-fluorescence X de l'uranium induite dans ces échantillons est trop faible. Par contre, le gain croît rapidement avec la teneur en uranium car l'auto-fluorescence augmente avec le carré de la teneur. Par exemple, le gain en temps d'acquisition pour l'échantillon de 14 000 ppm<sub>U</sub> est de 8 et pour l'échantillon de 98 457 ppm<sub>U</sub> est de 74. A l'inverse, si le gain associé à  $Cm_U(92 \text{ keV})$  fluctue aussi d'un échantillon à l'autre, il a tendance à diminuer avec la teneur en uranium en raison du phénomène d'auto-absorption par l'uranium, très sensible à 92 keV et négligeable à 1001 keV.

## A.6 Mesure avec un analyseur à fluorescence X

Dans le cadre de la thèse sur l'optimisation des méthodes de spectrométrie gamma pour la prospection de l'uranium, et afin de valider les différentes teneurs en uranium mesurées sur les échantillons d'uranium prêtés par ORANO Mining lors de différentes mesures de spectrométrie gamma, il a été décidé de réaliser différentes mesures par fluorescence X. Ces mesures sont réalisées grâce à un analyseur à fluorescence X, NITON XL2 GOLDD, de ThermoFisher SCIENTIFIC [42].



**Figure 132 : Analyseur à fluorescence X NITON XL2 GOLDD, de ThermoFisher SCIENTIFIC**

Le principe de l'analyseur est décrit dans le § I.4.1. Pour résumé, un tube X vient exciter les premiers millimètres de la matière scannée en éjectant les électrons des couches orbitales des atomes présents. Suite à la réorganisation de ces cortèges orbitaux, plusieurs rayons X sont réémis depuis l'échantillon. Ces rayons X sont ensuite mesurés au sein d'un détecteur SDD situé au sein même de l'analyseur. L'énergie de ces rayons X est directement reliée à l'élément excité.

Remarque : le tableau suivant récapitule les énergies des rayons X de fluorescence de l'uranium suivant le type de transition électronique. Comme le tube X du NITON XL2 GOLDD fonctionne à une tension maximale de 45 kV, on ne peut qu'observer les transitions  $L_{\alpha 1}$ ,  $L_{\alpha 2}$ ,  $L_{\beta 1}$ ,  $L_{\beta 2}$  et  $L_{\gamma 1}$ . En effet, la discontinuité « L-edge » de l'uranium est située à 21.7574 keV alors que le « K-edge » est situé à 115.6061 keV. On peut donc éjecter seulement les électrons situés sur la couche orbitale L de l'uranium, qui seront remplacés par un électron de la couche M.

**Tableau 49 : Energie des rayons X (en keV) émis suite à différentes transitions électroniques pour l'uranium**

| Transition électronique | Energie (keV) |
|-------------------------|---------------|
| $K_{\alpha 1}$          | 98.44         |
| $K_{\alpha 1}$          | 94.67         |
| $K_{\beta 1}$           | 111.30        |
| $L_{\alpha 1}$          | <b>13.61</b>  |
| $L_{\alpha 2}$          | <b>13.44</b>  |
| $L_{\beta 1}$           | <b>17.22</b>  |
| $L_{\beta 2}$           | <b>16.43</b>  |
| $L_{\gamma 1}$          | <b>20.17</b>  |

Cette chaîne de mesure permet d'obtenir le spectre à basse énergie (0-50 keV) de l'échantillon excité par le tube X et d'en déduire les pourcentages massiques des éléments en présence grâce à différentes courbes d'étalonnage associées aux matériaux susceptibles d'être analysés. Il est à noter que plus l'élément est lourd (numéro atomique Z élevé), plus les limites de détection sont basses. En effet, l'effet photoélectrique est approximativement proportionnel à  $Z^{4.5}$ . Pour exemple, le modèle XL2 GOLDD de la société ThermoFisher Scientific présente une limite de détection de 10 ppm pour l'uranium alors que pour le potassium celle-ci vaut environ 600 ppm. Les derniers analyseurs à fluorescence X admettent néanmoins

des limites de détection plus basse (2 à 3 ppm pour l'uranium et 30 ppm pour le potassium pour le modèle XL3 GOLDD+ de Thermo Fisher Scientific).

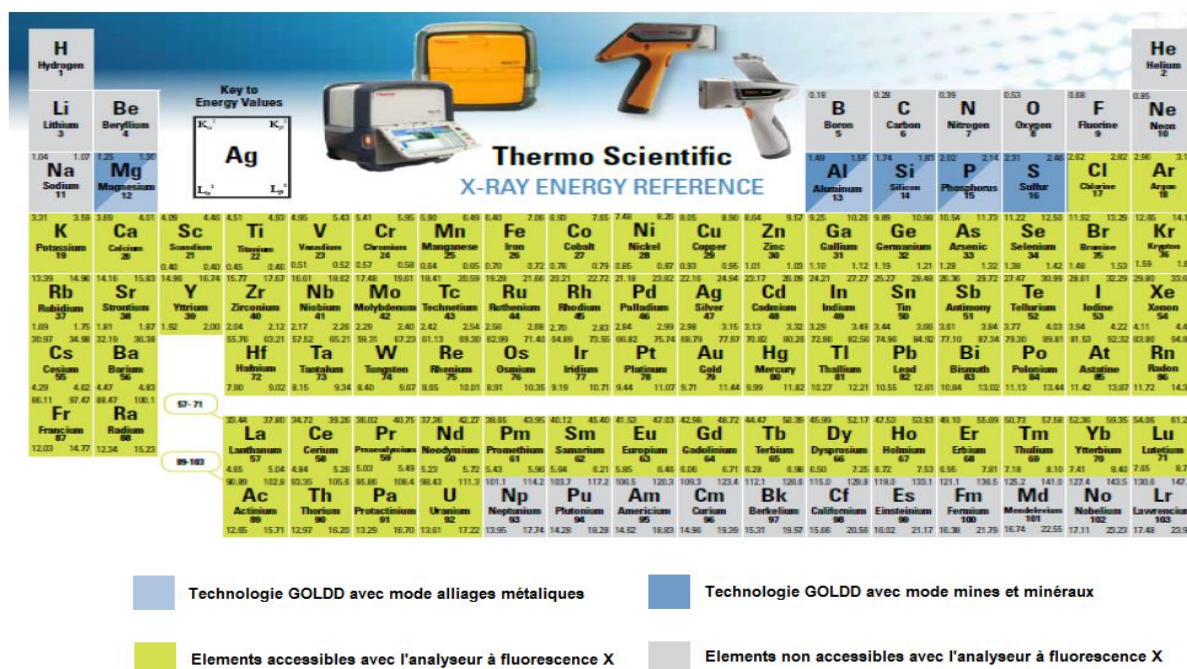


Figure 133 : Elements mesurables par l'analyseur à fluorescence X

L'analyseur NITON XL2 GOLDD est composé d'un détecteur SDD (Silicon Drift Detector) qui est différent du détecteur Si-PIN (jonction intrinsèque intercalée entre une région dopé P et une autre dopé N) par la taille de l'anode, beaucoup plus petite et située au centre d'une des faces du cristal (voir § 1.4.2).

### Mesure d'échantillons de minerai d'uranium

Les mesures sur les échantillons d'uranium ont été réalisées dans une enceinte de protection prévue à cet effet (voir la Figure 134). La taille des échantillons étant supérieur à la hauteur de l'enceinte, ceux-ci ont dû être mesuré sur leur face latérale. La mesure par fluorescence X permet seulement une caractérisation surfacique du minerai. On estime que 70 % des rayons X de 17 keV sont absorbés dans le premier millimètre d'un échantillon SiO<sub>2</sub> de 1000 ppm<sub>U</sub> avec le logiciel MicroShield [64]. La zone hachurée en rouge dans le schéma suivant représente le volume approximatif scanné sur un échantillon d'uranium. Cependant, ce volume varie en fonction de la teneur en uranium, de la densité du minerai et de sa minéralogie.

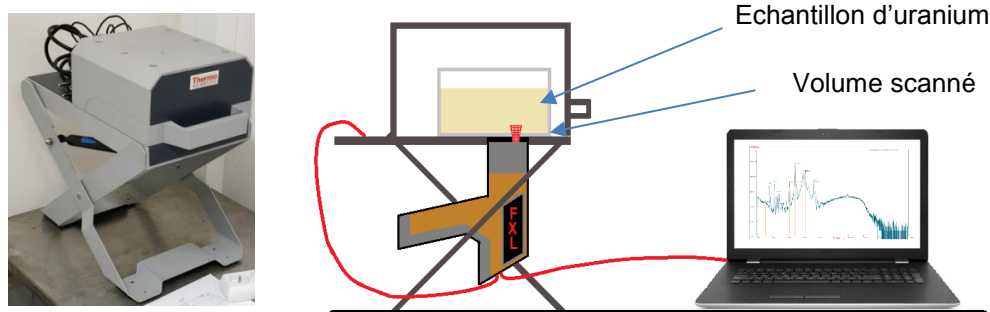
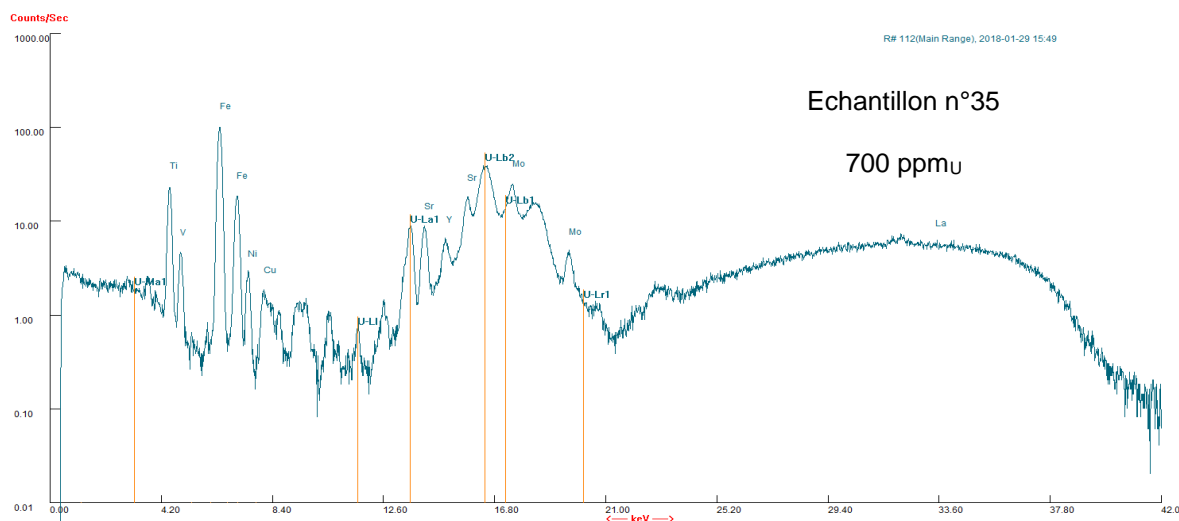


Figure 134 : Géométrie de mesure des échantillons par fluorescence X lors de l'utilisation d'une enceinte de protection (en photo à gauche).

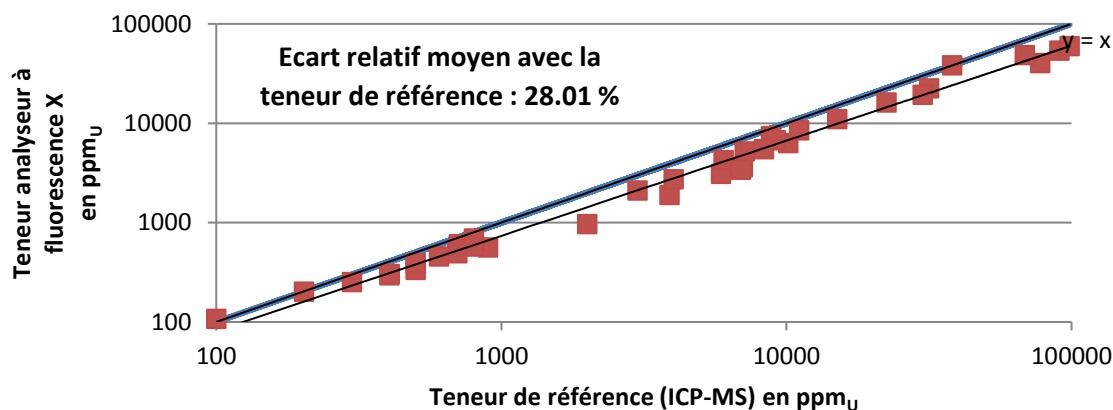
La Figure 135 représente le spectre obtenu pour l'échantillon n°35 de 700 ppm<sub>U</sub> en 30 secondes avec l'analyseur à fluorescence X. Grâce à sa bibliothèque d'émission de raies X, l'analyseur identifie chaque élément grâce à ses raies X. Les raies de fluorescence de l'uranium sont représentées par des traits verticaux oranges. On observe de nombreuses autres raies de fluorescence du fer, du cuivre ou du plomb.



**Figure 135 : Spectre obtenu suite à une mesure de 30 secondes avec l'analyseur et l'échantillon n°35 (700 ppm<sub>U</sub>)**

Par la suite, les différentes aires nettes présentes sont estimées sur ce spectre et une teneur en uranium est calculé grâce à différentes droites d'étalonnage pré-chargé au sein de l'analyseur. Ces droites d'étalonnage sont sélectionnées par l'opérateur suivant le type de mesure réalisée, soit mode « alliage » ou mode « mine ». Elles sont obtenues par le fabricant sur des échantillons étalons. Pour l'échantillon n°35 de 700 ppm<sub>U</sub>, l'analyseur mesure une teneur de  $491.8 \pm 22.88$  ppm<sub>U</sub>, soit une sous-estimation de 30 % de la teneur en uranium. L'incertitude de mesure de l'analyseur est donnée à  $2\sigma$ . On verra par la suite que la sous-estimation est due à l'atténuation des rayons X dans le pot en PVC, non prise en compte dans les coefficients d'étalonnage de l'analyseur.

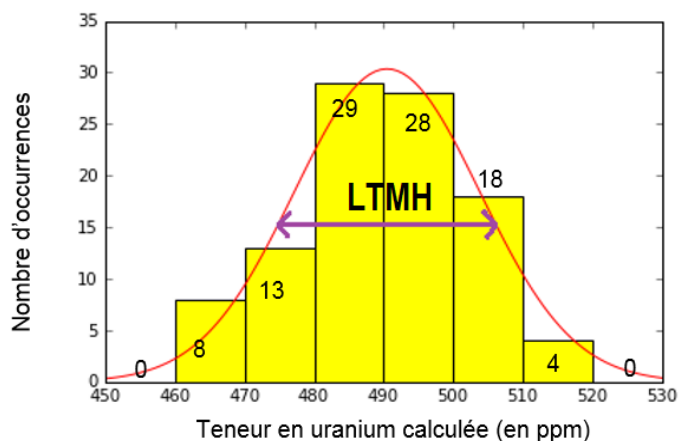
Par la suite chaque échantillon a été analysée de la même manière que précédemment. Les différentes teneurs mesurées sont représentées sur le graphique suivant. On remarque encore la sous-estimation moyenne sur tous les échantillons de 30 % entre la teneur calculée par l'analyseur et la teneur du minerai de référence mesurée par ICP-MS. L'incertitude sur les différentes teneurs est donnée à 2 écart-types par l'analyseur et est inférieure à 5 % pour tous les échantillons.



**Figure 136 : Teneur mesurée avec l'analyseur à fluorescence X vs. teneur de référence**

### - Répétabilité de la mesure

Afin de caractériser la répétabilité de la mesure par fluorescence X, l'échantillon n°35 a été mesuré cent fois avec le même mode opératoire. Le graphique suivant montre pour les 100 mesures les différentes teneurs calculées. Un fit gaussien est calculé sur la distribution obtenue et la largeur à mi-hauteur vaut 27 ppm<sub>u</sub>. Ces mesures permettent de montrer l'étroitesse des différentes teneurs obtenues et valide les erreurs calculées par l'analyseur lui-même.



**Figure 137 : Distribution des teneurs obtenues suite à 100 mesures sur l'échantillon n°35**

### - Reproductibilité de la mesure

La mesure par fluorescence X est une mesure surfacique. En effet, aux énergies étudiées, 17 keV par exemple pour les raies de fluorescence X<sub>L</sub> de l'uranium, l'absorption des rayons X dans l'échantillon est importante. Cette mesure sera donc fortement influencée par le positionnement de l'échantillon par rapport à l'analyseur et influencera donc la reproductibilité de ce type de mesure. C'est dans cette optique que différentes mesures ont été réalisées en modifiant le positionnement de l'échantillon face à l'analyseur. A chaque itération, l'échantillon, **n°8 de 500 ppm<sub>u</sub>**, est sorti de l'enceinte de confinement, secoué afin de mélanger le minerai concassé et replacé de manière totalement aléatoire devant la fenêtre de l'analyseur (8 mm de diamètre). Les différentes teneurs mesurées sont représentées dans le tableau ci-dessous.

**Tableau 50 : Teneurs mesurées pour différentes positions de l'échantillon face à la fenêtre de l'analyseur**

| n° itération | U (ppm <sub>u</sub> ) | ΔU (ppm <sub>u</sub> ) |
|--------------|-----------------------|------------------------|
| 1            | 335                   | 13                     |
| 2            | 331                   | 12                     |
| 3            | 351                   | 12                     |
| 4            | 326                   | 12                     |
| 5            | 443                   | 14                     |
| 6            | 337                   | 12                     |

On remarque que la teneur en uranium mesurée à l'itération n°5 est plus grande que les autres teneurs. Cette surestimation peut provenir d'une région en teneur en uranium plus riche dans l'échantillon ou à une absorption des rayons X plus faible dans la zone scannée (par exemple une épaisseur de PVC plus faible à traverser ou une densité plus faible de l'échantillon dans cette zone).

- **Sous-estimation de la mesure**

L'hypothèse la plus probable pour expliquer la sous-estimation systématique de la teneur en uranium mesurée avec l'analyseur à fluorescence X repose sur les droites d'étalonnages utilisées. En effet, la mesure de ces droites a été réalisée sur des échantillons étalons n'étant pas de même caractéristiques géométriques que ceux analysés pour la thèse. De ce fait, l'absorption des rayons X dans le pot en PVC n'est pas prise en compte lors de la mesure.

Afin de vérifier cette hypothèse, la teneur en uranium de l'échantillon n°3 de 899 ppm<sub>U</sub> a été mesurée sans le pot en PVC. Il est à noter que l'échantillon de minerai est sous forme de poudre et il a donc été nécessaire de déposer cette poudre dans deux sachets en vinyle (l'un contenant l'autre pour éviter de perdre de la matière en cas de fissure du premier sachet). Trois différentes mesures ont été réalisées sur cet échantillon : avec le pot en PVC, avec 2 couches de vinyle (une par sachet) et avec 4 couches de plastiques (en repliant les sachets sur eux-mêmes). De plus, plusieurs mesures ont été réalisées lors de la configuration « 2 couches de vinyle » afin d'observer une nouvelle fois la reproductibilité de la mesure lors d'une légère variation du positionnement de l'échantillon face à l'analyseur.

**Tableau 51 : Teneurs mesurées pour l'échantillon n°3 (899 ppm<sub>U</sub>) avec et sans pot en PVC**

| <b>Echantillons n°3</b>                   | <b>Teneur en uranium mesurée</b> |
|---|----------------------------------|
| <i>Teneur réelle</i>                      | 899 ppm <sub>U</sub>             |
| <i>Avec le pot en PVC (1 mm de paroi)</i> | 560 ppm <sub>U</sub>             |
| <i>Avec 2 couches vinyle</i>              | <i>n°1 : 710 ppm<sub>U</sub></i> |
|   | <i>n°2 : 629 ppm<sub>U</sub></i> |
|   | <i>n°3 : 663 ppm<sub>U</sub></i> |
|   | <i>n°4 : 768 ppm<sub>U</sub></i> |
| <i>Avec 4 couches vinyle</i>              | 569 ppm <sub>U</sub>             |

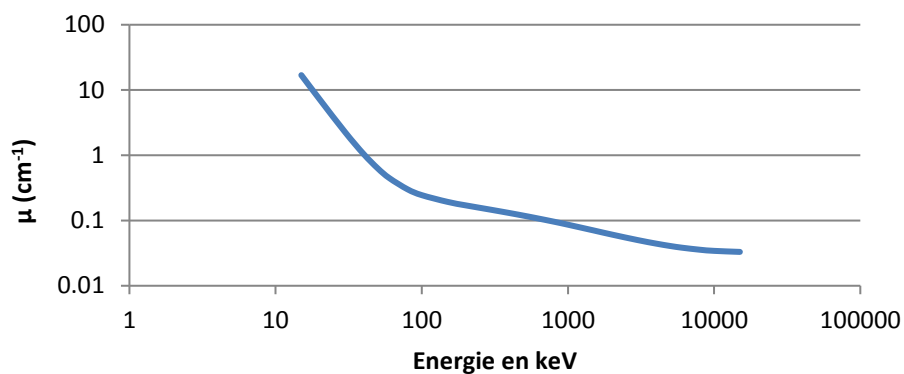
On remarque une nouvelle fois une sous-estimation de 38 % entre la teneur réelle de l'échantillon est la mesure de l'échantillon lorsque celui-ci est contenu dans le pot en PVC. Néanmoins, lorsque celui-ci est contenu dans deux enveloppes vinyles, il s'avère que la teneur mesurée tend vers une teneur plus grande car les rayons X sont moins absorbés lors de leur trajet. La moyenne des 4 mesures avec 2 couches vinyles est de 692 ppm<sub>U</sub>. Lors de la mesure avec 4 couches vinyles, la teneur mesurée est de 569 ppm<sub>U</sub> et se rapproche de celle avec le pot en PVC.

En analysant les différentes teneurs mesurées avec 2 et 4 couches vinyles, on peut de manière approximative estimer l'atténuation due à 1 couches vinyles. Cette atténuation de la teneur mesurée semble être d'environ 10 % par couche vinyles. Il semblerait donc que sans aucune couche vinyles la teneur calculée serait autour de la teneur référence de 899 ppm<sub>U</sub> pour cet échantillon. De plus, on remarque que la sous-estimation de 30 % de la teneur est estimée théoriquement par MicroShield. En effet, on est capable d'estimer le nombre de rayons X absorbés par les 1 mm de PVC grâce au coefficient d'atténuation linéique (voir Figure 138). Seulement 56.3 % de 20 keV subsiste après 1 mm. Il semblerait donc que, dans le cas où le pot en PVC de 1 mm d'épaisseur n'est pas pris en compte, la teneur en uranium peut être sous-estimée jusqu'à 40 %.

**Tableau 52 : Pourcentage de rayons X absorbé après 1 mm de PVC pour 4 énergies distinctes.**

| <b>Energie du rayon X incident</b>                        | <b>15 keV</b> | <b>20 keV</b> | <b>30 keV</b> | <b>40 keV</b> |
|---|---------------|---------------|---------------|---------------|
| <b>Pourcentage de rayons X absorbés après 1 mm de PVC</b> | 73.5 %        | 43.7 %        | 16.8 %        | 8.48 %        |





**Figure 138: Coefficient d'atténuation linéique  $\mu(\text{cm}^{-1})$  dans le PVC de densité 1.3 en fonction de l'énergie de la particule incidente**

Les différentes mesures réalisées avec l'analyseur à fluorescence X ont permis de valider les teneurs en uranium des échantillons prêtés par ORANO Mining. Néanmoins ces mesures ont montré les limites d'une telle technique. En effet, celle-ci n'est que surfacique et est donc adaptée à des échantillons parfaitement homogènes ou de faible volume.

Néanmoins, ce type de mesure a l'avantage de donner une première indication de la teneur en uranium en des temps très court, de l'ordre de 30 secondes.

## A.7 Régression multilinéaire GReMLin

Le logiciel GReMLin [58] (Générateur de Régression MultiLinéaire), développé au sein du Laboratoire de Mesures Nucléaires, permet de réaliser une régression multilinéaire afin d'établir une corrélation entre différents paramètres mesurés et un résultat observé. L'algorithme utilisé se base sur la méthode des moindres carrés qui consiste à minimiser la différence entre la valeur calculée et la valeur observée.

Afin de comprendre le fonctionnement global du logiciel GReMLin, plaçons-nous dans le cas d'une étude multiparamétrique menée sur le rendement de fluorescence à 185 keV pour la nouvelle géométrie de mesure (voir annexe A.3). Nous disposons de 754 valeurs de rendements de fluorescence à 185 keV pour différentes teneurs en uranium, hauteur de remplissage et densité d'échantillon, On souhaite pouvoir calculer ce rendement de fluorescence avec seulement comme indications la teneur en uranium, la hauteur et la densité de l'échantillon suivant une relation quadratique d'ordre 4, c'est-à-dire trouver 9 coefficients notés  $b_0$  à  $b_6$  tel que :

$$\eta_{fluor}(E) = b_0 + b_1 \times h + b_2 \times Cm_U + b_3 \times h \times Cm_U + b_4 \times h^2 + b_5 \times h^2 \times Cm_U + b_6 \times h^2 \times Cm_U^2 + b_7 \times Cm_U^2 + b_8 \times Cm_U^2 \times h$$

Soit  $Y$  la matrice colonne représentant les rendements de fluorescence à 185 keV calculé par simulation MCNP et  $X_i$  les différents indicateurs permettant le calcul de ce rendement (densité, hauteur, teneur en uranium),

On a alors :

$$Y = \begin{pmatrix} y_1 \\ \vdots \\ y_{754} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \eta_{fluor1}(d_1, h_1, Cm_1) \\ \vdots \\ \eta_{fluor754}(d_{754}, h_{754}, Cm_{U754}) \end{pmatrix} \text{ et } \forall i \in [1; 754] X_i = \begin{pmatrix} x_{i,1} \\ \vdots \\ x_{i,754} \end{pmatrix}$$

Où  $\forall j \in [1; 754]$  :

- $x_{1,j} = 1$
- $x_{2,j} = h$
- $x_{3,j} = Cm_U$
- $x_{4,j} = h \times Cm_U$
- $x_{5,j} = h^2$
- $x_{6,j} = h^2 \times Cm_U$
- $x_{7,j} = h^2 \times Cm_U^2$
- $x_{8,j} = Cm_U^2$
- $x_{9,j} = Cm_U^2 \times h$

On pose

$$X = (X_1 \ X_2 \ X_3 \ X_4 \ X_5 \ X_6 \ X_7 \ X_8 \ X_9)$$

Alors

$$X = \begin{pmatrix} 1 & h_1 & Cm_{U1} & h_1 \times Cm_{U1} & h_1^2 & h_1^2 \times Cm_{U1} & h_1^2 \times Cm_{U1}^2 & Cm_{U1}^2 & Cm_{U1}^2 \times h_1 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ 1 & h_{754} & Cm_{U754} & h_{754} \times Cm_{U754} & h_{754}^2 & h_{754}^2 \times Cm_{U754} & h_{754}^2 \times Cm_{U754}^2 & Cm_{U754}^2 & Cm_{U754}^2 \times h_{754} \end{pmatrix}$$

Soit  $B = \begin{pmatrix} b0 \\ b1 \\ b2 \\ b3 \\ b4 \\ b5 \\ b6 \\ b7 \\ b8 \end{pmatrix}$  la matrice des coefficients recherchés et  $Y' = \begin{pmatrix} y1' \\ \vdots \\ y71' \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \eta_{flu01}(E) \\ \vdots \\ \eta_{flu756}(E) \end{pmatrix}$  la matrice regroupant les

rendements de fluorescence calculées par  $\eta_{flu}(E)$ . On a dès lors  $Y' = XB$ . On ne peut pas inverser la matrice  $X$  pour trouver  $B$  car celle-ci n'est pas une matrice carrée. Nous devons donc passer par la méthode des moindres carrés afin de résoudre le problème.

La méthode des moindres carrés est la suivante :

Soit

$$SR = \sum_{j=1}^{756} e_j^2$$

Avec  $e_j = y_j - y_j'$  l'écart entre la valeur  $y_j$  et  $y_j'$  (ou résidu).

L'écart type résiduel est défini par  $\sigma_{résiduel} = \sqrt{SR}$

La méthode des moindres carrés impose de **minimiser** la valeur  $SR$ .

On pose la matrice  $S$ , appelée matrice des effets, tel que :

$$S = \begin{pmatrix} \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ 1 & x_{2,j} - \overline{x_{2,j}} & x_{3,j} - \overline{x_{3,j}} & x_{4,j} - \overline{x_{4,j}} & x_{5,j} - \overline{x_{5,j}} & x_{6,j} - \overline{x_{6,j}} & x_{7,j} - \overline{x_{7,j}} & x_{8,j} - \overline{x_{8,j}} & x_{9,j} - \overline{x_{9,j}} \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \end{pmatrix}$$

$\overline{x_{i,j}}$  représente la moyenne des  $x_{i,j}$ .

Par démonstration,  $SR$  est minimisée lorsque  $B = [{}^tSS]^{-1} {}^tSY$ . Ainsi, on peut obtenir les valeurs de  $B$  en calculant simplement  $S$ .

Une fois les coefficients  $b_i$  calculés, le logiciel GRMLin permet d'étudier la cohérence de ceux-ci avec le modèle en définissant une « confiance » pour chacun d'entre eux. Si la valeur de la confiance est inférieure à 95 % (seuil paramétrable par l'utilisateur), le coefficient est supprimé de l'analyse. Une nouvelle régression est donc menée, sans ce coefficient, jusqu'à obtenir un modèle adéquate ayant le plus petit écart type résiduel possible et des coefficients utiles au modèle. La confiance définie pour chaque coefficient est calculée suivant une loi de Student à  $(n-p-1)$  degrés de liberté (où  $n$  est le nombre d'observations et  $p$  le nombre de paramètres utilisés pour la régression).

Afin de calculer la valeur de la « confiance » assortie à chaque coefficient, on calcule préalablement la valeur :

$$s_r = \sqrt{\frac{SR}{n-p-1}}$$

Chaque coefficient  $a_i$  calculé est assorti à un écart type noté  $s(a_i)$  donné par la racine carrée du  $i^{\text{ème}}$  terme diagonal de la matrice :

$$\text{Var}(A) = s_r^2 ({}^tSS)^{-1}$$

On définit ensuite le ratio :

$$T_{\text{OBS}} = \frac{a_i}{s(a_i)}$$

On montre que ce ratio suit une loi de Student à  $(n-p-1)$  degrés de liberté. La confiance liée au coefficient  $b_i$  ayant un écart type  $s(b_i)$  est donnée par l'aire nette sous la courbe de Student à  $(n-p-1)$  degrés de liberté entre  $-\infty$  et la valeur  $T_{\text{OBS}}$ . En d'autre terme, plus l'écart type  $s(b_i)$  associé au coefficient  $a_i$  est faible, plus la valeur  $T_{\text{OBS}}$  tend vers l'infini et induit donc une valeur de confiance pour ce coefficient proche de 100 %.

Une fois les coefficients calculés et leur cohérence avec le modèle vérifiée, on définit  $\nu$ , le nombre de degrés de liberté du système, par

$$\nu = n - p$$

Dans le cas du calcul du rendement de fluorescence à 185 keV pour la nouvelle géométrie de mesure, les coefficients  $b_7$  n'est pas cohérents avec la régression (confiance inférieure à 95 %), il est donc retiré de l'étude. Le nombre d'observations est de 754 échantillons. Le nombre de paramètres utilisés pour la régression est de 8 (paramètre  $b_7$  supprimé). La résolution multiparamétrique a donc un nombre de degrés de liberté de **746**. L'écart type résiduel calculé est de  **$3.852 \times 10^{-10}$** .

On trouve ainsi pour la régression multilinéaire du rendement de fluorescence à 185 keV avec la nouvelle géométrie de mesure 8 coefficients, notés  $b_0$  à  $b_8$  ( $b_7 = 0$ ) dans le tableau suivant :

**Tableau 53 : Coefficients  $b_0$  à  $b_8$  pour la régression multilinéaire du rendement de fluorescence à 185 keV pour la nouvelle géométrie de mesure.**

| Coefficients | 185 keV                 | Confiance |
|--------------|-------------------------|-----------|
| $b_0$        | $2.41 \times 10^{-8}$   | 100 %     |
| $b_1$        | $-3.53 \times 10^{-9}$  | 100 %     |
| $b_2$        | $-3.82 \times 10^{-14}$ | 100 %     |
| $b_3$        | $-1.07 \times 10^{-14}$ | 100 %     |
| $b_4$        | $1.71 \times 10^{-10}$  | 100 %     |
| $b_5$        | $1.19 \times 10^{-15}$  | 100 %     |
| $b_6$        | $-6.35 \times 10^{-21}$ | 100 %     |
| $b_7$        | 0                       | -         |
| $b_8$        | $2.41 \times 10^{-8}$   | 100 %     |

La « confiance » de 100 % des facteurs permet de s'assurer de la validité du modèle.

## A.8 Spectres NaI expérimentaux et MCNP

Cette annexe récapitule pour les 6 sources étudiées les spectres obtenus expérimentalement et par simulation MCNP pour un éloignement source-détecteur de 30 cm. On peut noter sur chaque spectre que la simulation du détecteur NaI ne prend pas en considération les phénomènes de rétrodiffusion des rayonnements gamma issus des différentes sources utilisées (murs, table, porte source, photomultiplicateur...).

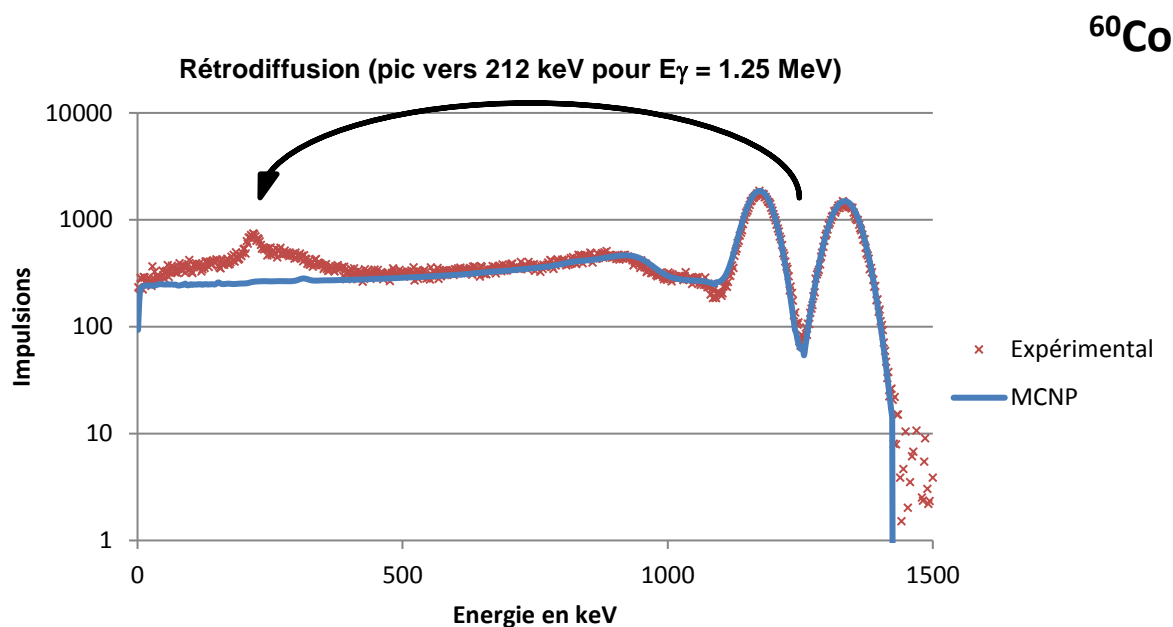


Figure 139: Spectres MCNP et expérimental du  $^{60}\text{Co}$

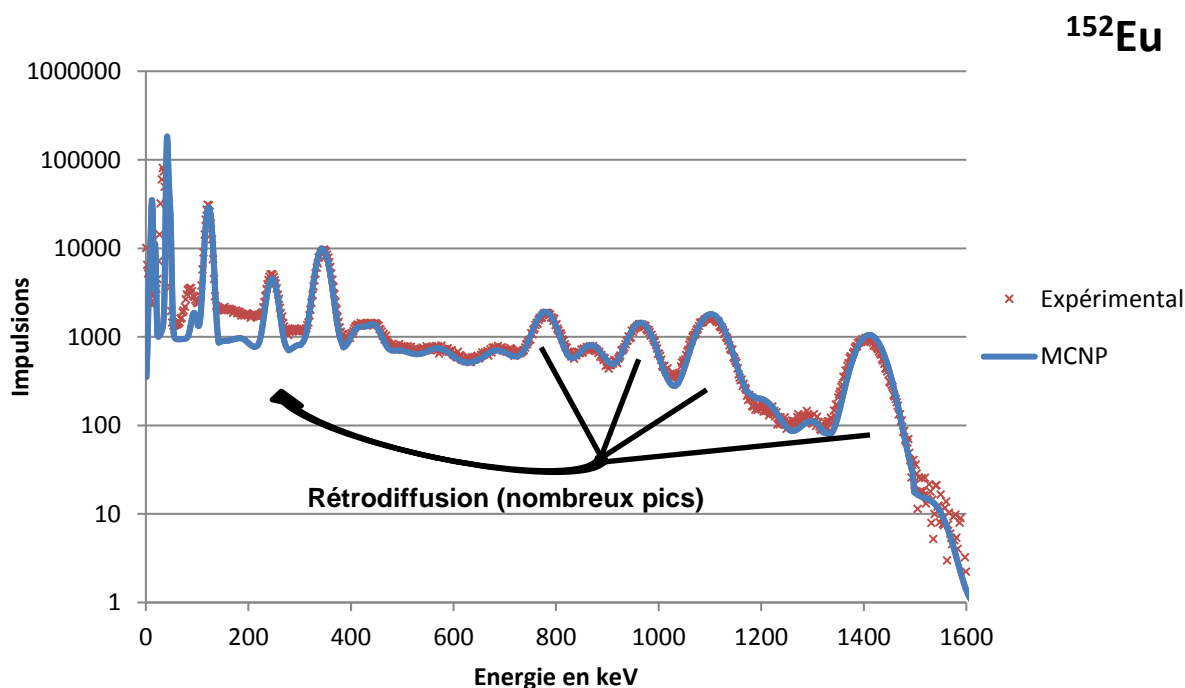


Figure 140: Spectres MCNP et expérimental de l' $^{152}\text{Eu}$

Rétrodiffusion (pic à 199 keV pour  $E_\gamma = 898$  KeV et à 224 keV pour  $E_\gamma = 1836$  MeV)  **$^{88}\text{Y}$**

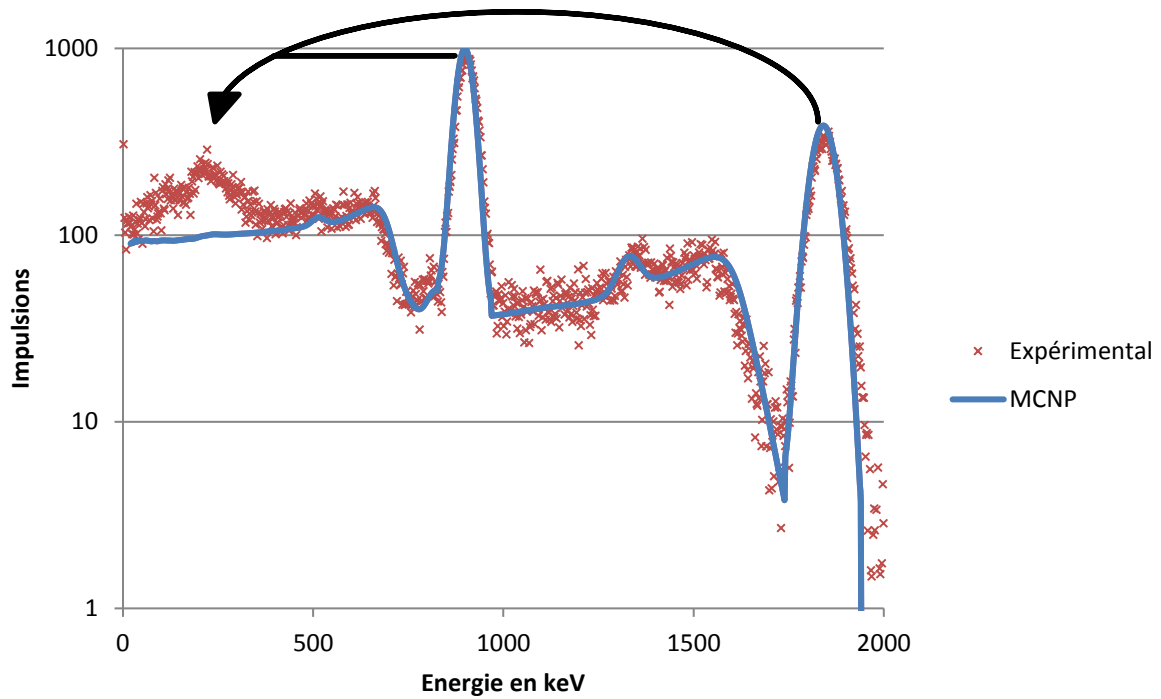


Figure 141 : Spectres MCNP et expérimental de  $^{88}\text{Y}$

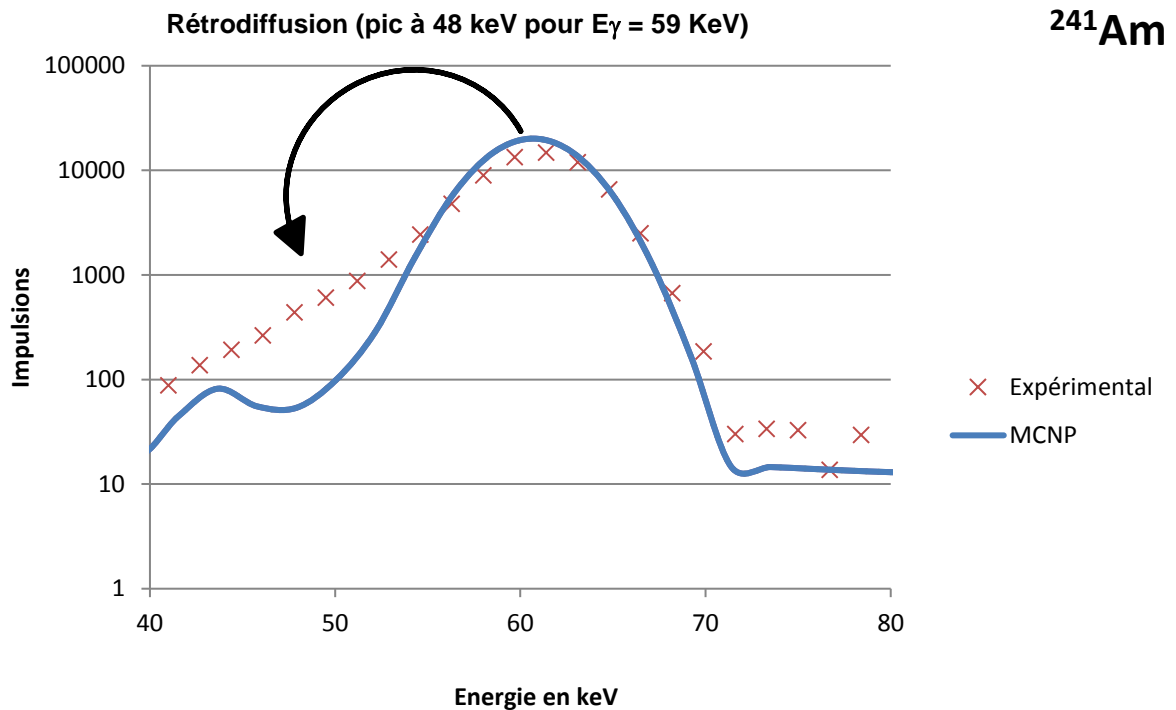


Figure 142 : Spectres MCNP et expérimental de  $^{241}\text{Am}$

**<sup>137</sup>Cs**

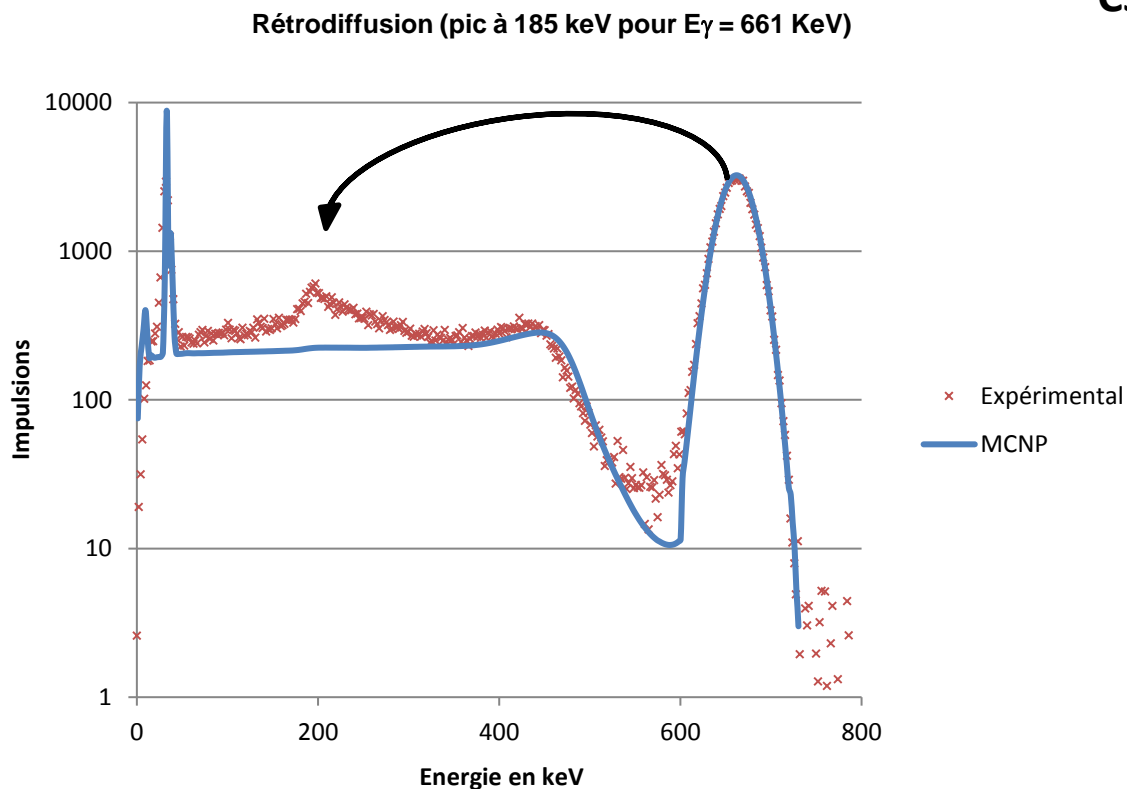


Figure 143 : Spectres MCNP et expérimental du <sup>137</sup>Cs

**<sup>133</sup>Ba**

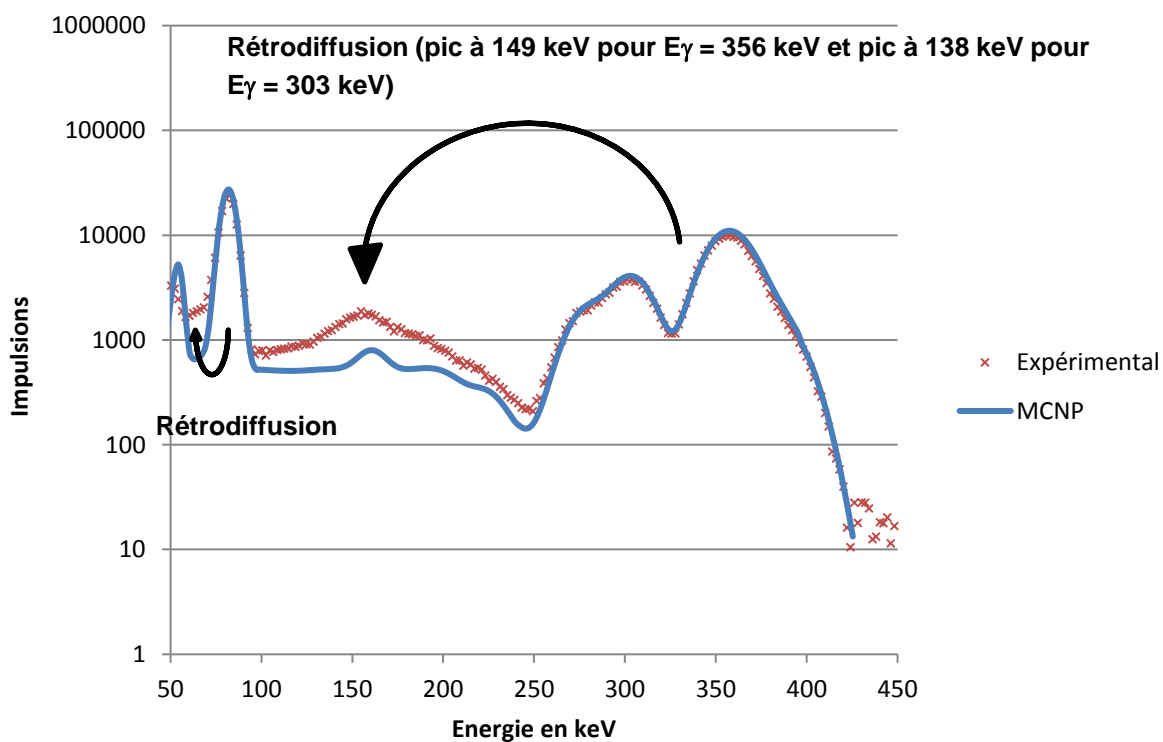


Figure 144: Spectres MCNP et expérimental du <sup>133</sup>Ba

## A.9 Coefficients correctifs K pour les zones « Uranium 2 et 3 »

Les graphiques suivants représentent les variations du facteurs correctif K dans le cas de l'utilisation de la zone U2 (entre 59 keV et 73 keV puis 87 keV et 111 keV) en tant que zone uranium du spectre gamma dans la méthode par bandes d'énergie, voir § III.4.3.

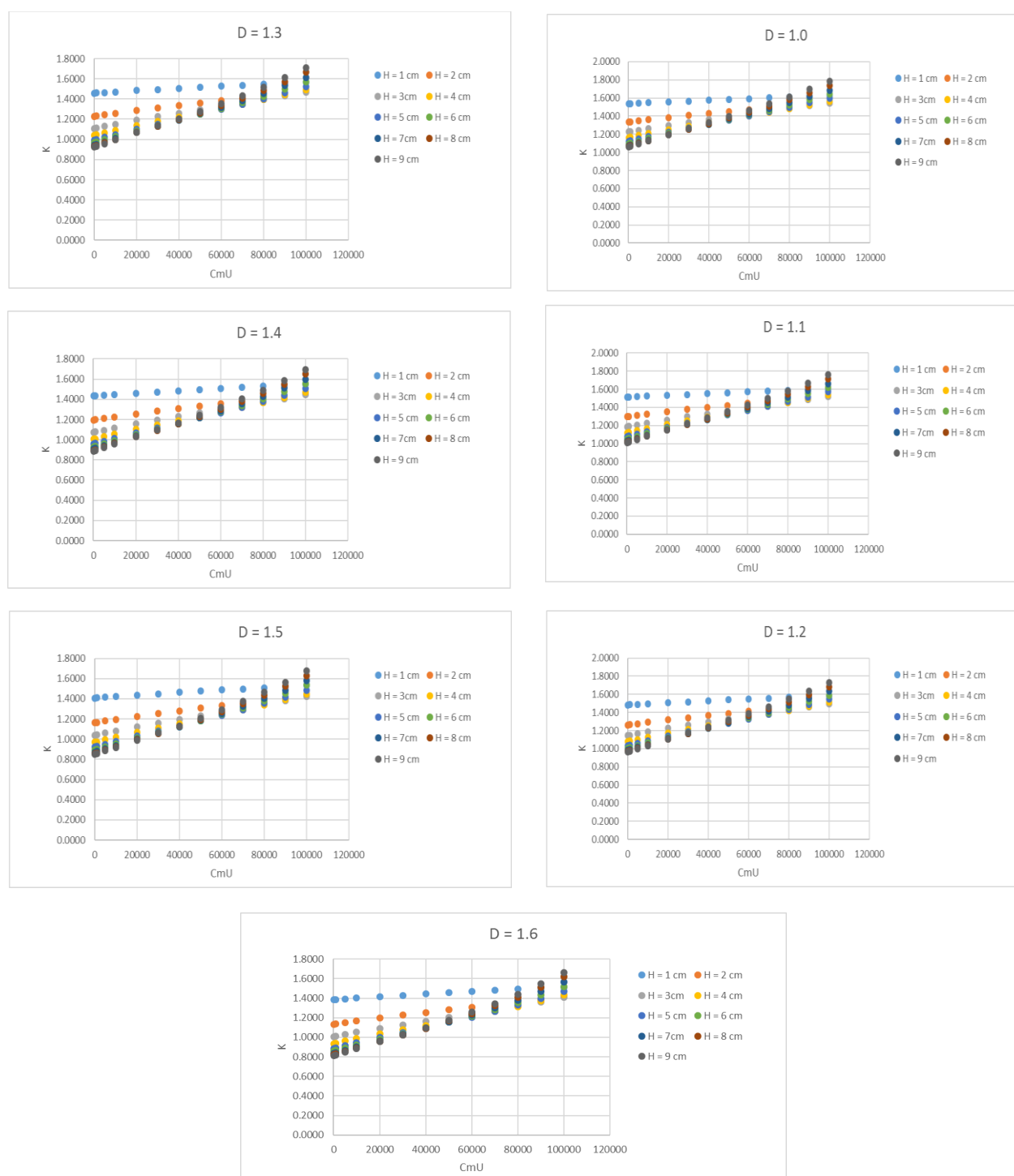
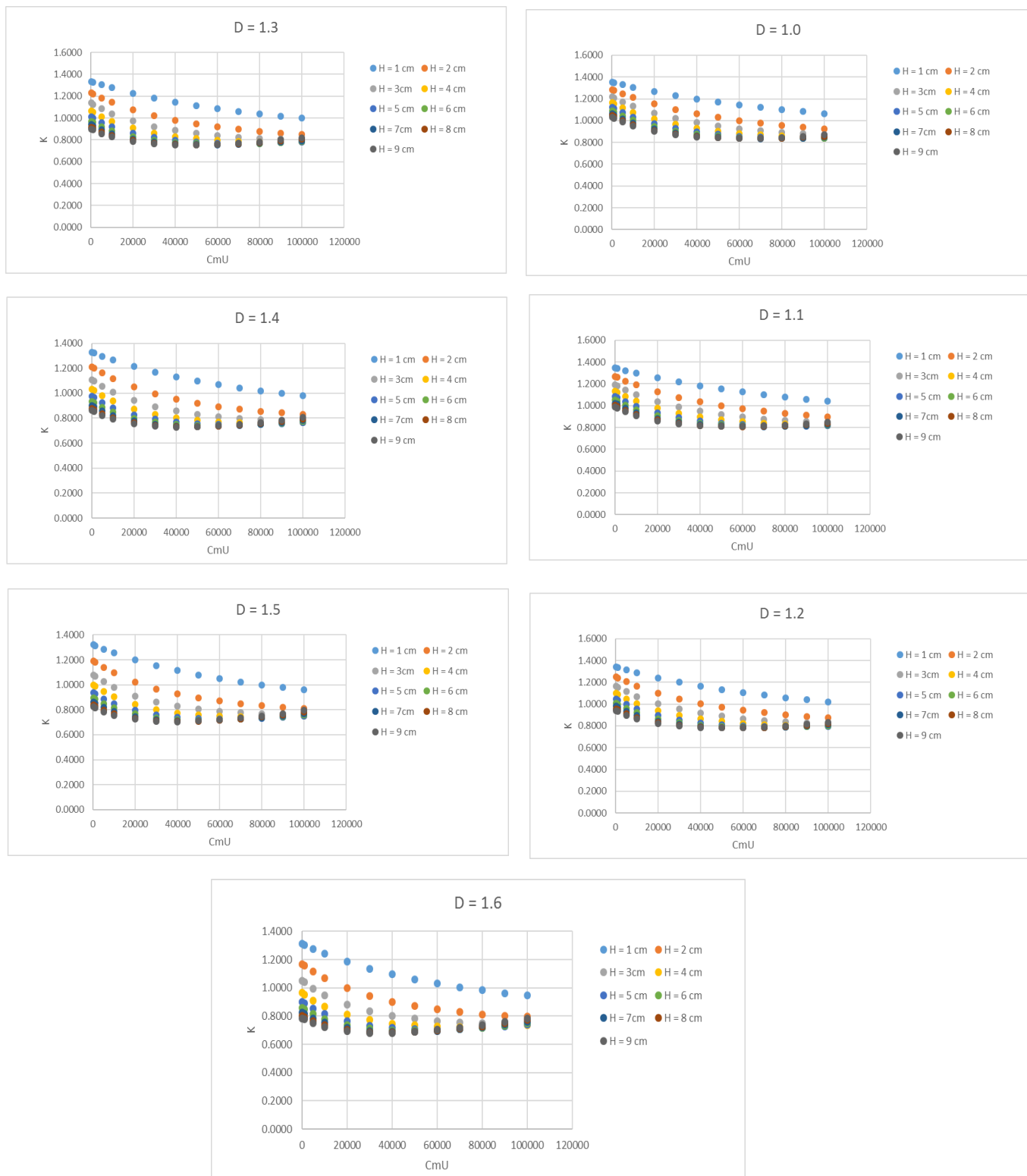


Figure 145: Variation du facteur correctif K pour la zone U2 en fonction de 6 densités pour 13 teneurs en uranium et 9 hauteurs de remplissage



Les graphiques suivants représentent les variations du facteurs correctif K dans le cas de l'utilisation de la zone U3 (87 keV et 111 keV) en tant que zone uranium du spectre gamma dans la méthode par bandes d'énergie, voir § III.4.3.



**Figure 146: Variation du facteur correctif K pour la zone U3 en fonction de 6 densités pour 13 teneurs en uranium et 9 hauteurs de remplissage**

## A.10 Comparaison expérience-calcul - embase OSPREY

Lors de l'utilisation de l'embase OSPREY pour la méthode par bandes d'énergie, plusieurs comparaisons expérience-calcul ont été entreprises sur trois échantillons : l'échantillon n°35 de 700 ppm<sub>U</sub>, l'échantillon n°10 de 90 747 ppm<sub>U</sub> et l'échantillon n°16 de 98 457 ppm<sub>U</sub>. Les figures et les tableaux suivants récapitulent les spectres expérimentaux, les spectres simulés et le nombre d'impulsions dans chaque zone d'intérêt de la méthode d'énergie pour ces trois échantillons.

**Remarque :** La valeur de l'activité massique modélisée pour le groupe uranium provient de la mesure de l'aire nette de la raie à 1001 keV issue du <sup>234m</sup>Pa et l'activité massique du groupe radon modélisée provient quant à elle de la mesure de l'aire nette de la raie à 609 keV issue du <sup>214</sup>Bi (mesures GeHP abordées au Chapitre II).

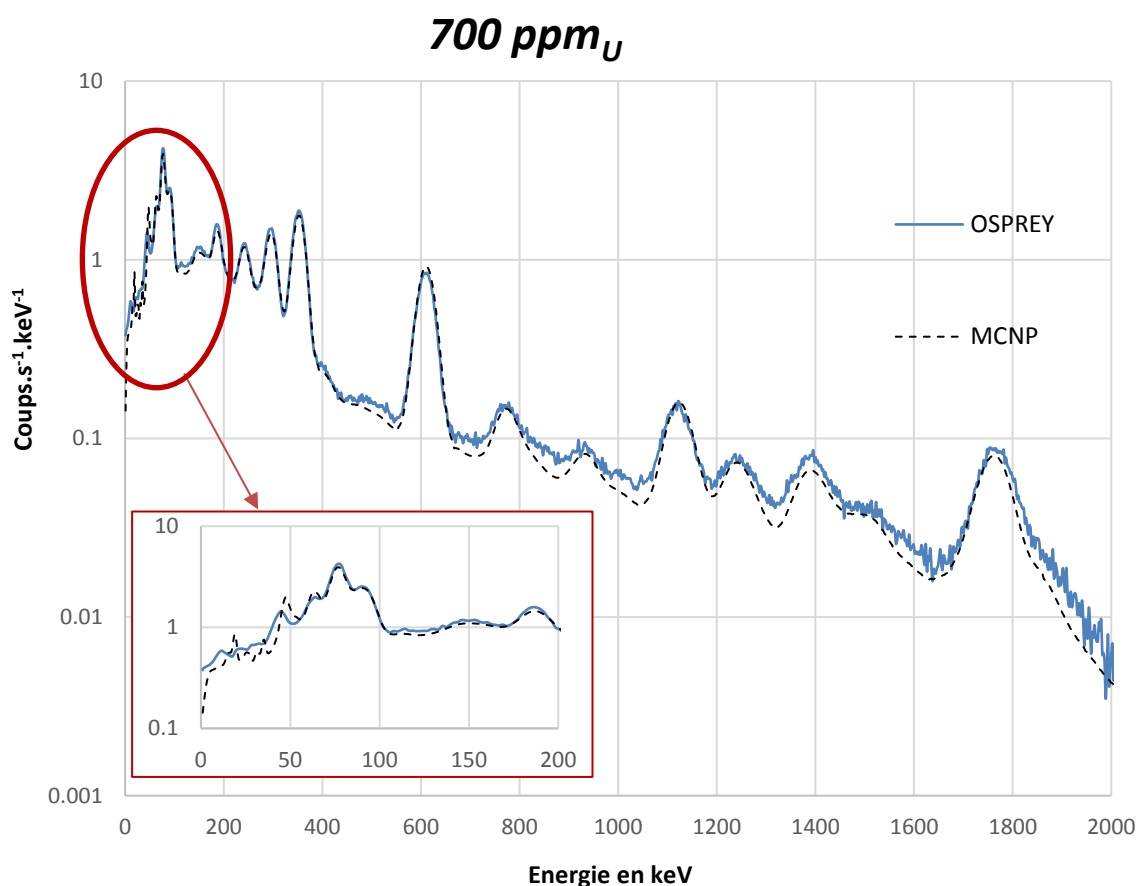
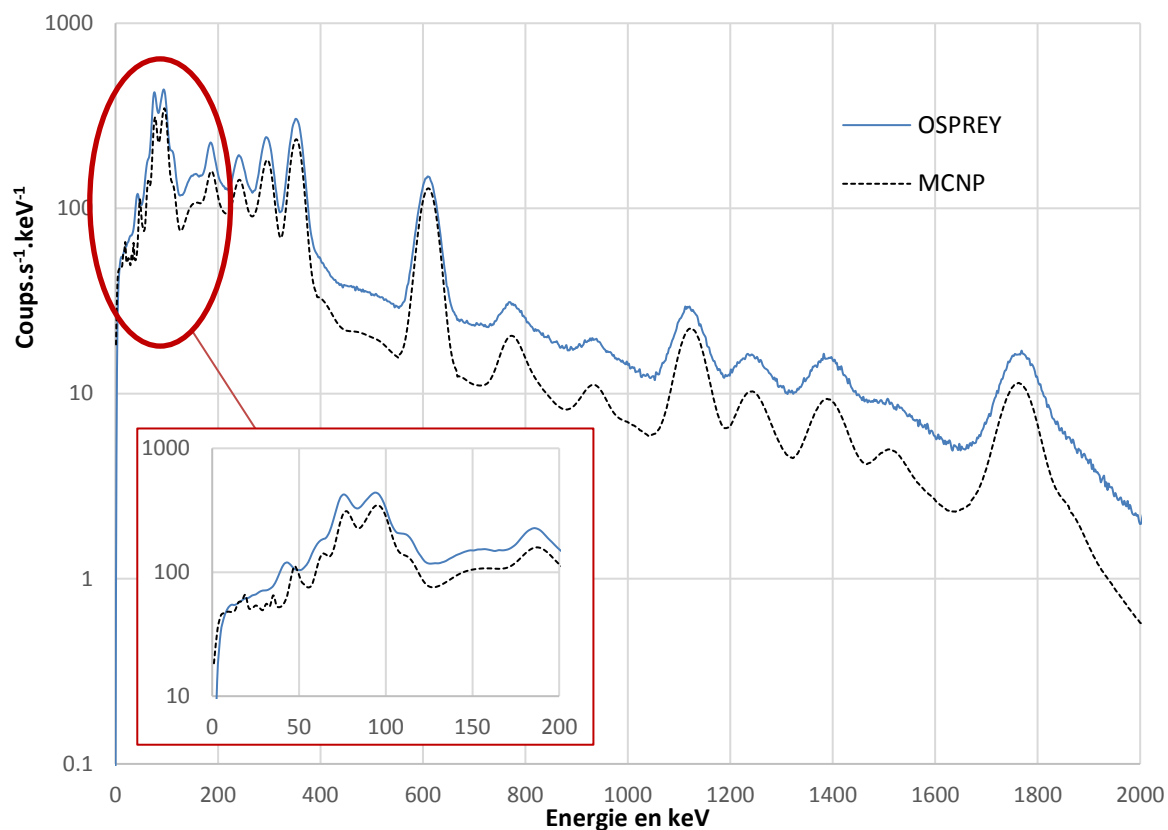


Figure 147 : comparaison du spectre expérimental issue d'une mesure NaI avec l'embase OSPREY et du spectre simulé par MCNP pour l'échantillon n°35 de 700 ppm<sub>U</sub>.

Tableau 54 : Valeurs expérimentales et simulées du nombre d'impulsions dans les zones U3 et Rn pour l'échantillon n°35.

| Spectre                                       | C <sub>U3</sub>        | C <sub>Rn</sub>        | C <sub>U3</sub> /C <sub>Rn</sub> | Sn(609 keV)            |
|---|------------------------|------------------------|----------------------------------|------------------------|
| MCNP  | 3.64 x 10 <sup>1</sup> | 4.57 x 10 <sup>1</sup> | 7.97 x 10 <sup>-1</sup>          | 3.46 x 10 <sup>1</sup> |
| EXPERIMENTALE (EXP)                           | 3.91 x 10 <sup>1</sup> | 4.33 x 10 <sup>1</sup> | 9.03 x 10 <sup>-1</sup>          | 3.20 x 10 <sup>1</sup> |
| $\frac{\text{MCNP} - \text{EXP}}{\text{EXP}}$ | -6.81%                 | 5.62%                  | -11.77%                          | 7.86%                  |

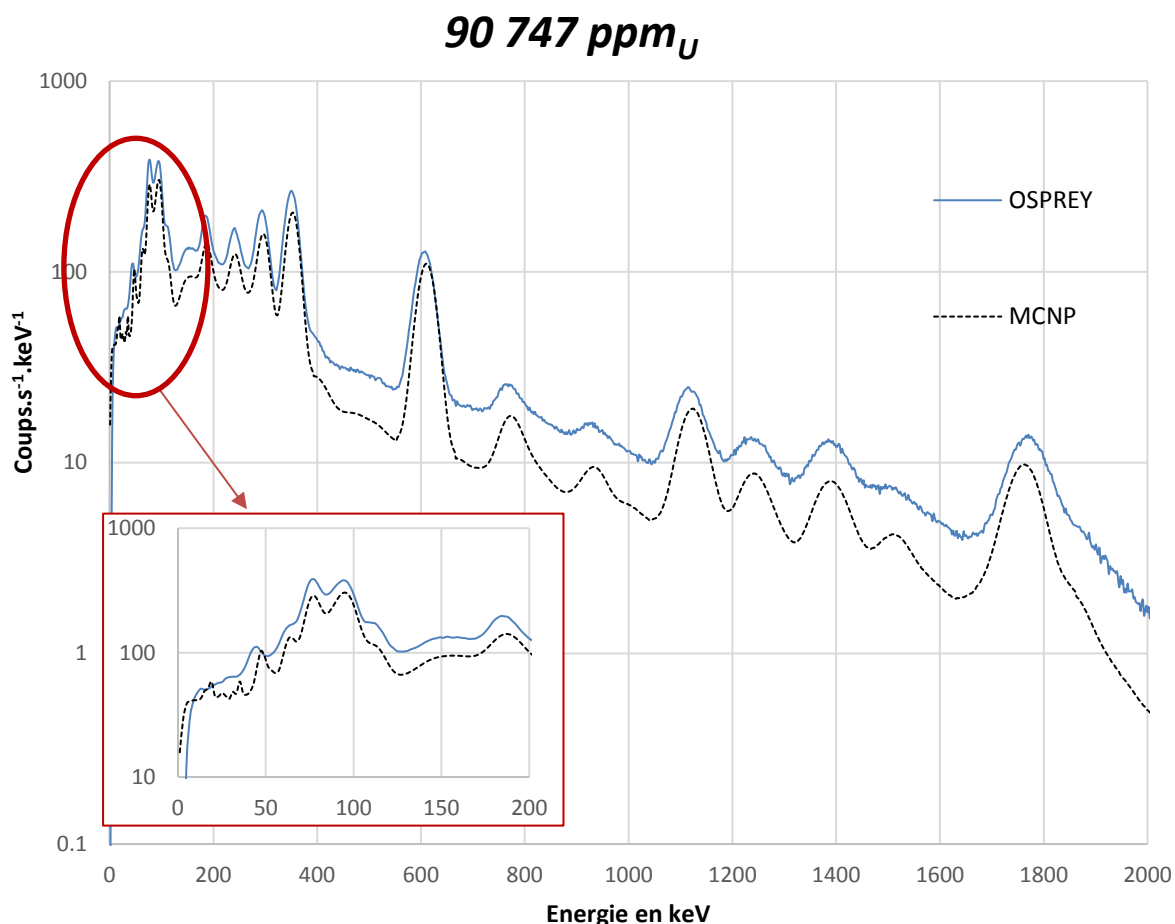
## 98 457 ppm<sub>U</sub>



**Figure 148 : comparaison du spectre expérimental issu d'une mesure NaI avec l'embase OSPREY et du spectre simulé par MCNP pour l'échantillon n°16 de 98 457 ppm<sub>U</sub>.**

**Tableau 55 : Valeurs expérimentales et simulées du nombre d'impulsions dans les zones U3 et Rn pour l'échantillon n°16.**

| Spectre                                       | C <sub>U3</sub>        | C <sub>Rn</sub>        | C <sub>U3</sub> /C <sub>Rn</sub> | Sn(609 keV)            |
|---|------------------------|------------------------|----------------------------------|------------------------|
| MCNP  | 6.31 x 10 <sup>3</sup> | 6.37 x 10 <sup>3</sup> | 9.91 x 10 <sup>-1</sup>          | 4.81 x 10 <sup>3</sup> |
| EXPERIMENTALE (EXP)                           | 7.76 x 10 <sup>3</sup> | 8.00 x 10 <sup>3</sup> | 9.70 x 10 <sup>-1</sup>          | 5.14 x 10 <sup>3</sup> |
| $\frac{\text{MCNP} - \text{EXP}}{\text{EXP}}$ | -18.68%                | -20.42%                | 2.18%                            | -6.33%                 |



**Figure 149 : comparaison du spectre expérimental issu d'une mesure NaI avec l'embase OSPREY et du spectre simulé par MCNP pour l'échantillon n°10 de 90 747 ppm<sub>U</sub>.**

**Tableau 56 : Valeurs expérimentales et simulées du nombre d'impulsions dans les zones U3 et Rn pour l'échantillon n°10.**

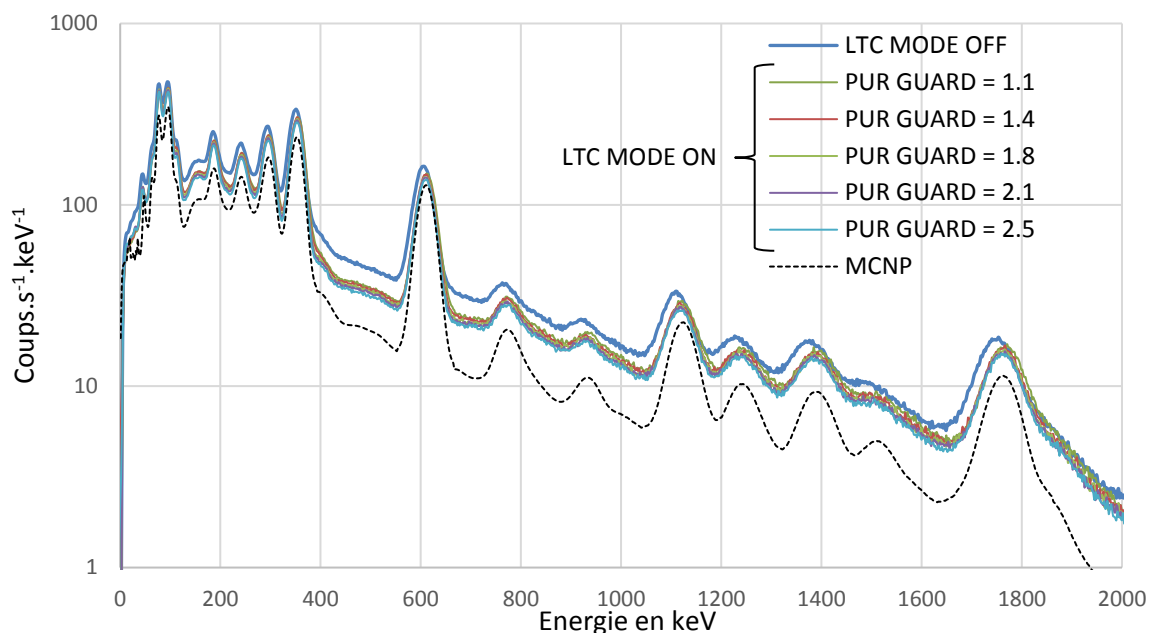
| Spectre                                       | C <sub>U3</sub>        | C <sub>Rn</sub>        | C <sub>U3</sub> /C <sub>Rn</sub> | Sn(609 keV)            |
|---|------------------------|------------------------|----------------------------------|------------------------|
| MCNP  | 5.34 x 10 <sup>3</sup> | 5.49 x 10 <sup>3</sup> | 9.73 x 10 <sup>-1</sup>          | 4.17 x 10 <sup>3</sup> |
| EXPERIMENTALE (EXP)                           | 7.13 x 10 <sup>3</sup> | 6.91 x 10 <sup>3</sup> | 1.03                             | 4.50 x 10 <sup>3</sup> |
| $\frac{\text{MCNP} - \text{EXP}}{\text{EXP}}$ | -25.05%                | -20.62%                | -5.58%                           | -7.16%                 |

Dans le cas de l'échantillon n°35 de 700 ppm<sub>U</sub>, le spectre expérimental est en adéquation avec le spectre simulé par MCNP. Par contre, dans le cas des forts taux de comptage (échantillons n°10 et n°16 de plus de 90000 ppm<sub>U</sub>), on remarque une sous-estimation systématique des spectres expérimentaux issus de l'embase OSPREY par la simulation MCNP.

L'hypothèse la plus probable pour expliquer cet écart est l'apparition de phénomènes d'empilements d'impulsions lorsque le détecteur est soumis à un fort flux de gamma incident.

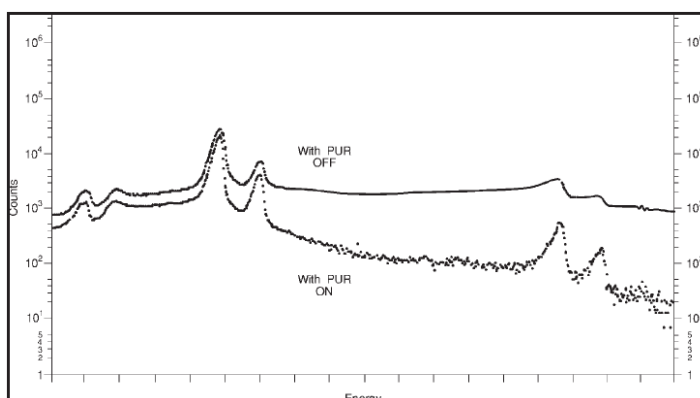
Six mesures expérimentales ont été effectuées sur l'échantillon n°16 en activant et désactivant le paramètre *Live Time Correction (LTC)*. En mode *OFF*, c'est-à-dire lorsque qu'aucune correction de temps mort et de rejet des empilements n'est effectuée, le spectre obtenu est nettement supérieur que si ce paramètre est en mode *ON* (voir Figure 150). Il apparaît clairement que lorsque le paramètre *LTC* est en mode

ON (avec un PUR GUARD variant de 1.1 à 2.5 – voir Figure 63), l'électronique d'acquisition permet une amélioration du spectre (rejet d'une partie des empilements). Cependant, malgré un LTC en mode ON et une valeur élevée de PUR GUARD, des empilements semblent encore présents car la simulation MCNP reste nettement inférieure au spectre mesuré (voir Figure 150), contrairement au cas de l'échantillon de 700 ppm<sub>U</sub> pour lequel le taux de comptage est faible (voir Figure 147).



**Figure 150 : spectres expérimentaux de l'échantillon n°16 avec LTC mode OFF, et LTC mode ON pour différentes valeurs du PUR GUARD. Comparaison avec le spectre simulé par MCNP.**

Ce rejet insuffisant des empilements provient certainement de l'utilisation, dans l'embase OSPREY, d'un préamplificateur qui met en forme les impulsions, notamment en les rallongeant fortement par rapport au signal d'origine issu du photomultiplicateur du scintillateur NaI (moins de 1  $\mu$ s typiquement, voir Figure 152). En effet, la fréquence d'échantillonnage du codeur analogique-numérique (ADC) de l'embase OSPREY n'est que de 20 MHz, soit un échantillon toutes les 50 ns, ce qui est trop peu pour numériser correctement le signal directement en sortie du photomultiplicateur (notamment le front de montée et le maximum, voir Figure 152). Le préamplificateur donne une forme gaussienne à cette impulsion, qui devient plus longue et numérisable avec une fréquence de 20 MHz. Cependant, cette mise en forme favorise les phénomènes d'empilements d'impulsions à fort taux de comptage (voir Figure 151). Il est dès lors possible d'observer un continuum surestimé dans les spectres expérimentaux par rapport aux simulations car ces dernières ne modélisent pas les empilements.



**Figure 151 : Comparaison des spectres  $^{57}\text{Co}$  avec PUR GUARD ON et OFF [49]**

**Remarque :** Il serait donc intéressant, pour pouvoir utiliser cette méthode sur des échantillons de fortes teneurs, d'utiliser une électronique plus rapide basée sur une intégration de la charge directement en sortie de photomultiplicateur. En effet, il n'est pas nécessaire, pour des scintillateurs de moyenne résolution comme les cristaux NaI, d'utiliser un préamplificateur qui n'améliore pratiquement pas la résolution énergétique (largeur des raies présentes dans le spectre) mais qui rallonge nettement la durée des impulsions.

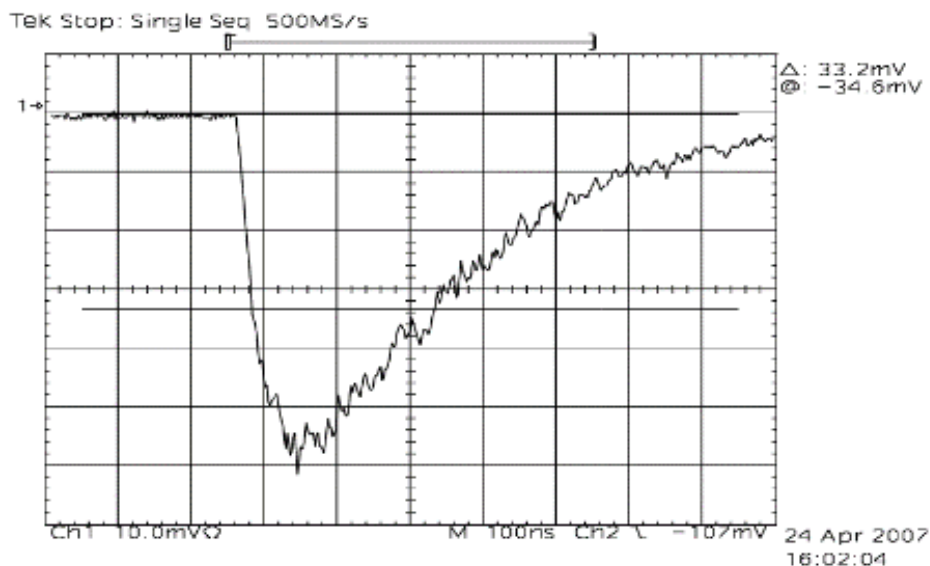


Figure 152 : Exemple typique du signal en sortie du photomultiplicateur d'un NaI (100 ns par division) [65]

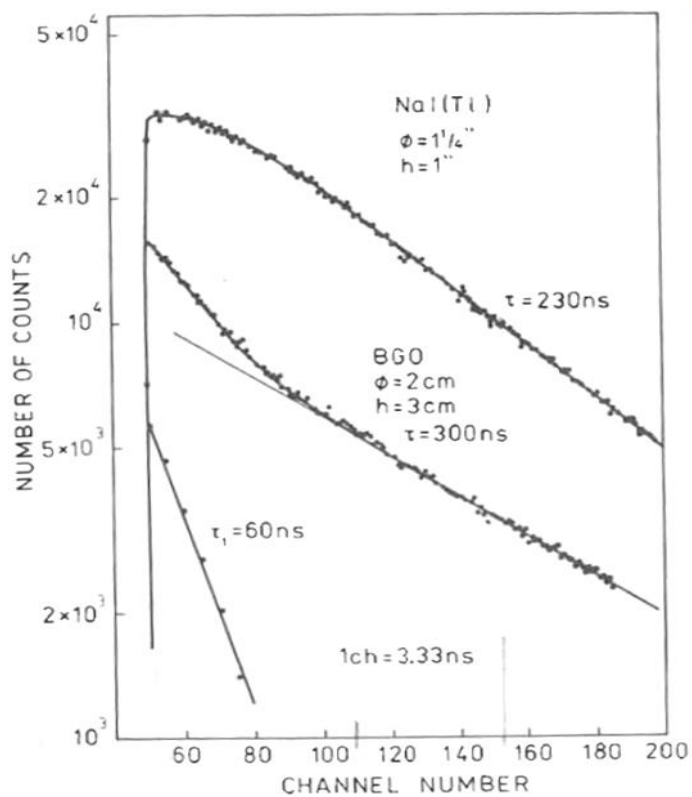


Figure 153 : Exemple typique du signal en sortie de photomultiplicateur d'un NaI et d'un BGO (3.33 ns par division) [66]

## A.11 Note d'industrialisation de la méthode par bandes d'énergie

### Introduction

La présente annexe a pour objectif de décrire le procédé par bandes d'énergie permettant la mesure de la teneur en uranium d'un échantillon de minerai concassé et de son déséquilibre radioactif U/Rn.

Le schéma de procédé est représenté dans la Figure 154. Il résume de manière synthétique la démarche à suivre pour mesurer la teneur en uranium d'un échantillon. Chaque bloc est numéroté afin d'être explicité dans les parties suivantes du document.

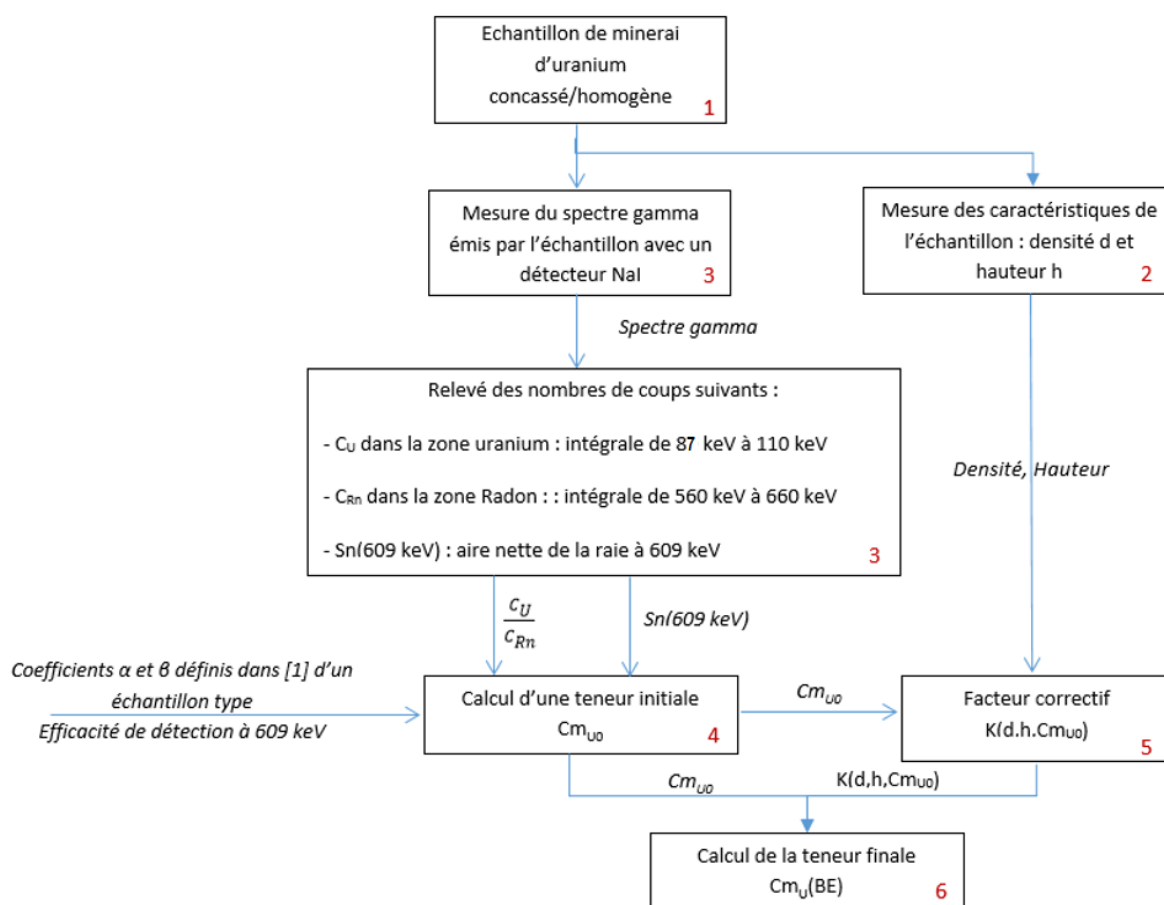


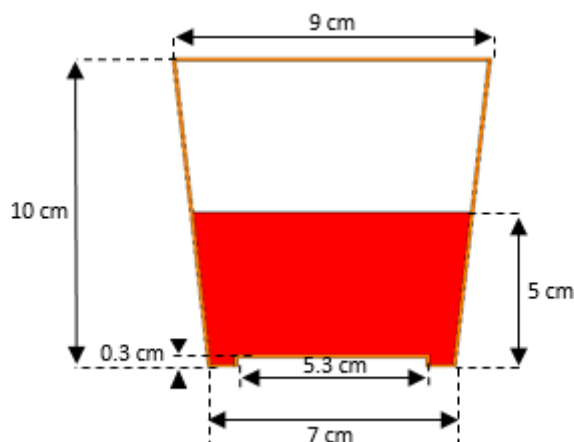
Figure 154 : Schéma de procédé de la méthode par bandes d'énergie d'évaluation de la teneur en uranium  $C_{mU}$  (concentration massique)

**Remarque :** Les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  et la facteur correctif  $K$  sont établis au préalable par simulation numérique (voire expérimentalement pour  $\alpha$  et  $\beta$ ).

### Méthodologie

1 - L'échantillon type mesuré est concassé finement (grain inférieur au millimètre pour limiter les incertitudes liées aux hétérogénéités § III.3.4.5) et homogénéisé. La Figure 155 récapitule une géométrie type d'échantillon de minerai d'uranium concassé et homogène contenu dans un pot en PVC de paroi

**1 mm.** L'échantillon type est de densité **1.3**, de hauteur **5 cm**, de minéralogie **SiO<sub>2</sub>** et de teneur **1 000 ppm<sub>U</sub>**. Cet échantillon est utilisé comme échantillon de référence pour la méthode.

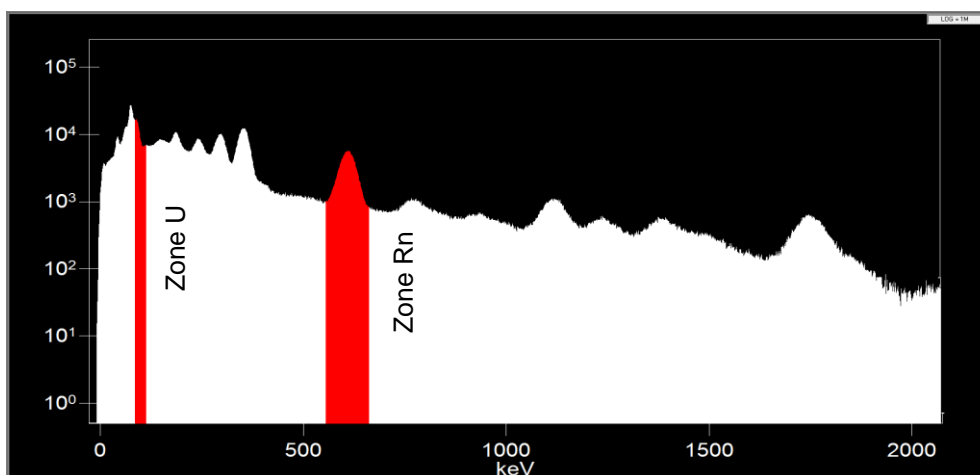


**Figure 155 : Echantillon type lors de la mesure par bandes d'énergie**

2 – La méthode nécessite la mesure des caractéristiques de l'échantillon : hauteur et densité (par pesée de l'échantillon).

3 – L'échantillon est ensuite placé dans un blindage en plomb afin de s'affranchir du bruit de fond provenant de la salle de mesure (par exemple 4.5 cm d'épaisseur) tapissé de cuivre (par exemple 3 mm d'épaisseur) pour éliminer les rayons X de fluorescence du plomb. Le château de plomb est fermé grâce à un chapeau lui aussi en plomb. L'échantillon repose directement sur le système de détection gamma. Le spectre gamma de l'échantillon est mesuré grâce à un détecteur NaI 3"x3" (voir Figure 91). Le temps de mesure est explicité au point n°7. En règle générale, il est de quelques minutes.

La Figure 156 représente un exemple de spectre mesuré.



**Figure 156 : Spectre gamma obtenu lors de la méthode par bandes d'énergie**

Du spectre ainsi mesuré, il est nécessaire d'évaluer le nombre d'impulsions dans la zone U, noté  $C_U$ , et dans la zone Rn, noté  $C_{Rn}$ . De plus, la méthode repose sur la mesure de l'activité en « radon » de l'échantillon. L'évaluation de cette activité est réalisée grâce à la mesure de l'aire nette (avec extraction du fond Compton sous le pic, contrairement à  $C_{Rn}$  qui correspond à l'aire brute) de la raie à 609 keV du  $^{214}\text{Bi}$  en utilisant la formule usuelle de spectrométrie gamma suivante :



$$A(^{214}_{83}\text{Bi}) = \frac{S_n(609 \text{ keV})}{\text{Eff}_{609\text{keV}} \times I_{609\text{keV}}(^{214}_{83}\text{Bi}) \times T_c}$$

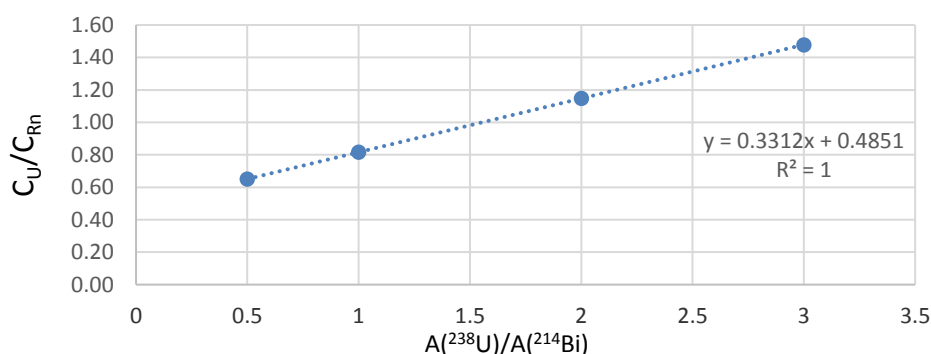
Avec :

- $S_n(609 \text{ keV})$  : aire nette nombre de coups dans la raie à 609 keV lors de la mesure de l'échantillon,
- $\text{Eff}_{609\text{keV}}$  : efficacité du détecteur à 609 keV (sans dimension : nombre de coups dans le pic à 609 keV par photon gamma de 609 keV émis dans l'échantillon), calculée avec MCNP ou ISOCS pour un échantillon de hauteur h et de densité d,
- $I_{609\text{keV}}(^{214}_{83}\text{Bi})$  : intensité d'émission du  $^{214}\text{Bi}$  à 609 keV (nombre de photons émis par désintégration). Cette intensité est de 46.1 % selon ENSDF,
- $T_c$  : temps de comptage (en secondes) actif (corrigé du temps mort).

4 – Le § III.3.3.2 a permis de relier le nombre des impulsions  $C_U$  et  $C_{Rn}$  au déséquilibre U/Rn de l'échantillon par la relation :

$$\frac{A(^{238}_{92}\text{U})}{A(^{214}_{83}\text{Bi})} = \frac{C_U - \beta}{\alpha}$$

Les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  sont calculés par simulation numérique valent respectivement **0.3313** et **0.4856** pour la mesure de l'échantillon type. Il est aussi possible de déterminer expérimentalement la valeur des coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  en disposant d'échantillons étalons présentant différents déséquilibres U/Rn. Ces échantillons doivent être de mêmes caractéristiques que l'échantillon type (hauteur 5 cm, densité 1.3 et teneur de 1 000 ppm<sub>U</sub>). La mesure du ratio  $C_U/C_{Rn}$  en fonction du déséquilibre U/Rn des différents échantillons étalons permet d'obtenir les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  par régression linéaire (voir Figure 157).



**Figure 157 : Ratio  $C_U/C_{Rn}$  en fonction du déséquilibre U/Rn des échantillons étalons (ici par simulation numérique)**

**Remarque :** La valeur des coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  dépend de la géométrie de mesure, du type de détecteur utilisé et des caractéristiques de l'échantillon (hauteur, densité et teneur). Dans le cas d'un changement de détecteur (ici NaI 3"x3") ou pour une autre géométrie de mesure, une nouvelle calibration de ces coefficients serait nécessaire par simulation numérique ou expérimentalement grâce aux différents échantillons étalons. L'étude multiparamétrique menée par simulation (voir ci-après) serait aussi à reprendre).

La dernière étape consiste à déterminer la teneur en uranium de l'échantillon.

La teneur en uranium recherchée  $C_{m_u}$  (en ppm<sub>U</sub>) est définie par la relation suivante :

$$C_{m_u} = \frac{1.0072 \times 10^6 \times M(^{238}_{92}\text{U}) \times T_{1/2}(^{238}_{92}\text{U}) \times A(^{238}_{92}\text{U})}{N_a \times \ln(2) \times M_{ech}}$$

Avec :

- 1.0072 : ratio massique U/<sup>238</sup>U dans l'uranium naturel,
- Na : nombre d'Avogadro ( $6,022 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$ ),
- Cm<sub>u</sub> : teneur en uranium (en ppm<sub>U</sub>, c'est-à-dire en milligramme d'uranium par kilogramme d'échantillon, d'où le facteur de conversion  $10^6$  dans l'équation),
- M (<sup>238</sup>U) : masse molaire de l'<sup>238</sup>U (238,0507 g.mol<sup>-1</sup>),
- T<sub>1/2</sub>(<sup>238</sup>U) : temps de demi-vie (période radioactive) de l'<sup>238</sup>U ( $4.468 \times 10^9$  ans),
- A(<sup>238</sup>U) : activité en <sup>238</sup>U de l'échantillon (Bq)
- M<sub>ech</sub> : masse de l'échantillon (en grammes).

On déduit ainsi Cm<sub>U</sub> en combinant les équations précédentes :

$$Cm_{u0} = \frac{1.0072 \times 10^6 \times M(^{238}\text{U}) \times T_{1/2}(^{238}\text{U})}{\ln(2) \times Na \times M_{ech}} \times \frac{S_n(609 \text{ keV})}{Eff_{609keV} \times I_{609keV}(^{214}\text{Bi}) \times T_c} \times \frac{\frac{C_U}{C_{Rn}} - \beta}{\alpha}$$

5 – Pour tenir compte des différentes caractéristiques de chaque échantillon, une étude multiparamétrique a été menée par simulation numérique avec plus de 800 configurations d'échantillon présentant des hauteurs de remplissage h variant de 1 à 9 cm, des densités d variant de 1 à 1.6 et des teneurs en uranium Cm<sub>u0</sub> variant de 100 ppm<sub>U</sub> à 100 000 ppm<sub>U</sub>. On peut ainsi calculer un facteur correctif K(d,h,Cm<sub>u0</sub>) permettant de corriger les variations induites sur les coefficients α et β calculés sur un échantillon type de 5 cm de hauteur de remplissage, de densité 1.3 et de teneur 1 000 ppm<sub>U</sub> :

$$K(d, h, Cm_{u0}) = a0 + a1 \times Cm_{u0} + a2 \times d + a3 \times h + a4 \times d \times h + a5 \times Cm_{u0} \times d \times h \\ + a6 \times Cm_{u0}^3 + a7 \times h^3$$

**Avec :**

- a0 = 1.6894 (sans dimension)
- a1 =  $-6.4818 \times 10^{-6} \text{ ppm}_U^{-1}$
- a2 =  $-2.0609 \times 10^{-1}$  (sans dimension)
- a3 =  $-6.9441 \times 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$
- a4 =  $-2.4524 \times 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$
- a5 =  $3.0149 \times 10^{-7} \text{ ppm}_U^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$
- a6 =  $2.6408 \times 10^{-16} \text{ ppm}_U^{-3}$
- a7 =  $5.3079 \times 10^{-4} \text{ cm}^{-3}$

6 – On obtient finalement la teneur de l'échantillon par la relation suivante :

$$Cm_U = Cm_{u0} \times K \text{ avec une incertitude de } +/- 25 \%$$

L'incertitude associée a été établie dans le § III.6. Celle-ci prend l'hypothèse que l'échantillon est **homogène** (grain du minerai concassé inférieur au millimètre), de déséquilibre U/Rn supérieur à 0.1 et que le temps de comptage est assez long pour obtenir une incertitude statistique de l'ordre de 1 % sur le ratio C<sub>U</sub>/C<sub>Rn</sub>. Cette hypothèse est vérifiée quand le temps minimum d'acquisition, noté T<sub>min</sub>, vaut :

$$T_{min} = \frac{\left(\frac{1}{\tau_U}\right) + \left(\frac{1}{\tau_{Rn}}\right)}{(1\%)^2}$$

Avec :

- τ<sub>U</sub> : Taux de comptage dans la zone U
- τ<sub>Rn</sub> : Taux de comptage dans la zone Rn
- T<sub>c</sub> : Temps d'acquisition

De plus les échantillons étudiés doivent respecter les caractéristiques suivantes afin de pouvoir être corrigé par le facteur  $K(d, h, Cm_{U0})$  :

- teneur en uranium comprise entre 100 à 100 000 ppm<sub>U</sub>
- densité comprise entre 1 et 1.6
- hauteur de remplissage comprise entre 1 et 9 cm

## A.12 Utilisation d'un détecteur 2"x2" pour la méthode par bandes d'énergie

Lors de l'étude par bandes d'énergie, un détecteur NaI 3"x3" à disposition au Laboratoire de Mesures Nucléaires a été utilisé. Néanmoins, l'utilisation d'un NaI 2"x2" (modèle couramment utilisé par ORANO Mining) est envisageable, mais divise les différents taux de comptage par un facteur voisin de 2. Ce dernier résulte du simple ratio des volumes des cristaux de 2"x2" et 3"x3" (facteur 3.38), et à l'inverse du fait que les rayonnements gamma du minerai peuvent entrer dans les parois latérales du cristal 2"x2" (voir Figure 158), augmentant ainsi son efficacité de détection. La Figure 159 compare les spectres simulés avec les détecteurs NaI 2"x2" et NaI 3"x3" pour un même échantillon de 700 ppm<sub>U</sub>.

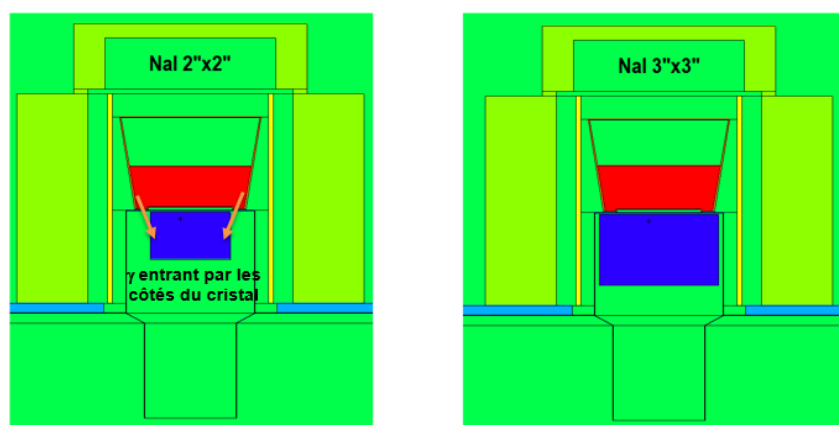
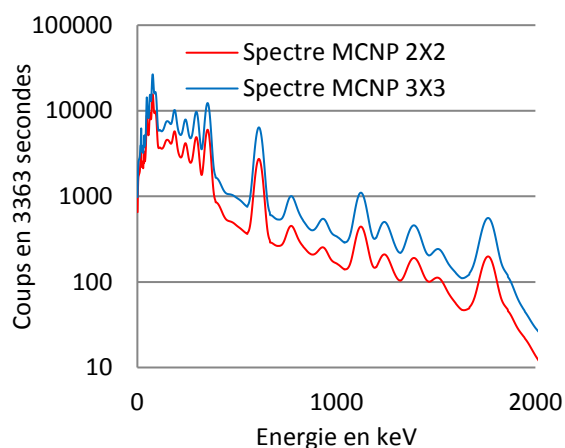


Figure 158 : Modèles numériques des mesures avec détecteurs NaI 2"x2" (à gauche) et 3"x3" (à droite).



| Zone                    | 2"x2"                        | 3"x3"                        | Ratio<br>$\frac{2"x2"}{3"x3"}$ |
|-------------------------|------------------------------|------------------------------|--------------------------------|
| Volume                  | 102.96 cm <sup>3</sup>       | 347.50 cm <sup>3</sup>       | 3.38                           |
| Uranium<br>(50-110 keV) | 2.46 x 10 <sup>5</sup> coups | 4.10 x 10 <sup>5</sup> coups | 1.7                            |
| Radon<br>(560-660 keV)  | 6.87 x 10 <sup>4</sup> coups | 1.58 x 10 <sup>5</sup> coups | 2.3                            |
| Total<br>(0-2000 keV)   | 1.05 x 10 <sup>6</sup> coups | 1.97 x 10 <sup>6</sup> coups | 1.9                            |

Figure 159 : Comparaison de deux spectres issus d'un même minerai d'uranium à 700 ppm<sub>U</sub> mesurés avec un détecteur NaI 2"x2" ou 3"x3". A droite, le nombre d'impulsions dans les différentes zones pour les 2 détecteurs ainsi que le ratio correspondant. Le ratio des volumes est aussi représenté.



# Tables

## Table des figures

|  |    |
|--|----|
| FIGURE 1 : PRINCIPE DES ROLL-FRONTS .....  | 15 |
| FIGURE 2 : RESSOURCE D'URANIUM DETERMINEES A L'ECHELLE MONDIALE AU 1ER JANVIER 2017 POUR UN PRIX INFERIEUR A 130 \$/KG D'URANIUM [2].....  | 16 |
| FIGURE 3 : COURS DE L'URANIUM ENTRE 2012 ET 2018 (EN \$/KG D'U OU \$/LB U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> ) [3] .....  | 16 |
| FIGURE 4 : MINE A CIEL OUVERT DE SOMAÏR, NIGER © MAURICE ASCANI/ORANO [4].....   | 16 |
| FIGURE 5 : EVOLUTION DES BESOINS MONDIAUX EN URANIUM DE 1945 A 2015 [2] .....  | 17 |
| FIGURE 6 : PHASE DE VALORISATION DU MINERAI D'URANIUM.....   | 18 |
| FIGURE 7 : PHOTOGRAPHIES D'UNE URANINITE [5] .....   | 19 |
| FIGURE 8 : CHAINES DE FILIATION DE L' <sup>238</sup> U, DE L' <sup>235</sup> U ET DU <sup>232</sup> Th AINSI QUE LES PERIODES RADIOACTIVES DES NUCLEIDES [8] .....   | 20 |
| FIGURE 9 : SCHEMA EXPLICATIF D'UN GISEMENT DE TYPE ROLL-FRONT ET PHOTOGRAPHIE D'UN GISEMENT TYPE [11] .....  | 22 |
| FIGURE 10 : SCHEMA EXPLICATIF DU LESSIVAGE, DE L'ADSORPTION - DESORPTION ET DU RECU A [12].....  | 22 |
| FIGURE 11 : SCHEMA EXPLICATIF D'UN SCINTILLATEUR INORGANIQUE [13].....   | 24 |
| FIGURE 12 : SCHEMA EXPLICATIF D'UN GEIGER-MÜLLER.....  | 24 |
| FIGURE 13 : CHAINE DE MESURE EN SPECTROMETRIE $\gamma$ .....   | 27 |
| FIGURE 14 : MESURE DE SPECTROMETRIE GAMMA HAUTE RESOLUTION MENEES AVEC UN DETECTEUR GERMANIUM (BEGE 2020) PAR LE LABORATOIRE DE MESURES NUCLEAIRES AU SEIN DE LA STATION D'ETALONNAGE DE BESSINES.....   | 27 |
| FIGURE 15 : SPECTRE GAMMA TYPIQUE MESURE D'UN ECHANTILLON D'URANIUM A 1500 PPM <sub>U</sub> .....  | 28 |
| FIGURE 16 : RESOLUTIONS TYPES D'UN DETECTEUR GeHP AINSI QUE DES SCINTILLATEURS NAI ET LABR <sub>3</sub> [22] .....   | 32 |
| FIGURE 17 : SPECTRES GAMMA MESURES SUR UN MEME BLOC ETALON PAR LE LMN A LA STATION D'ETALONNAGE DE BESSINES AVEC UN DETECTEUR GERMANIUM COAXIAL ET UN DETECTEUR A SCINTILLATION LABR <sub>3</sub> . .....  | 32 |
| FIGURE 18 : SPECTRE TYPIQUE D'UNE SPECTROMETRIE GAMMA AEROPORTEE OBTENUE LORS D'UNE ACQUISITION LONGUE SUR UN BLOC ETALON SITUE A WALKER FIELD [27] .....  | 33 |
| FIGURE 19 : SPECTRE POTASSIUM.....   | 35 |
| FIGURE 20 : SPECTRE THORIUM .....  | 36 |
| FIGURE 21 : SPECTRE URANIUM .....  | 36 |
| FIGURE 22 : ZONES D'ENERGIE I <sub>1</sub> ET I <sub>2</sub> POUR UN SPECTRE DE MINERAI D'URANIUM. LES SOURCES ADDITIONNELLES ONT POUR BUT UNE CALIBRATION ENERGETIQUE DU SYSTEME DE MESURES [37].....   | 37 |
| FIGURE 23 : DEFORMATION DU CONTINUUM COMPTON OBSERVE SUR LES SPECTRES DES BLOCS ETALONS DE BESSINES NORMALISES A 1 PPM <sub>U</sub> .....  | 37 |
| FIGURE 24 : SPECTRES DE RADIOGRAPHIE AVEC UN DETECTEUR NAI, NORMALISEES A 1 PPM <sub>U</sub> [39].....   | 38 |
| FIGURE 25 : NOMENCLATURE DES TRANSITIONS ELECTRONIQUES. ....   | 38 |
| FIGURE 26 : PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT D'UN DETECTEUR Si-PIN [40] .....  | 39 |
| FIGURE 27 : PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT D'UN DETECTEUR SDD [40] .....   | 39 |
| FIGURE 28 : SCHEMA EXPLICATIF D'UNE MESURE AVEC ANALYSEUR A FLUORESCENCE X (XRF) [42].....   | 40 |
| FIGURE 29 : SPECTRES SIMULES LORS D'UNE MESURE PGNA (CAPTURE RADIATIVE OU DIFFUSION INELASTIQUE) [43].....   | 41 |
| FIGURE 30 : PRINCIPE DE MESURE PAR INTERROGATION NEUTRONIQUE [45] ET SIMULATION NUMERIQUE MONTE CARLO DU « NUAGE NEUTRONIQUE » AUTOUR DE LA SOURCE D'EMISSION NEUTRONIQUE [43] .....   | 41 |
| FIGURE 31 : A GAUCHE, UN SCHEMA EXPLICATION DES DETECTEURS UTILISES POUR LA MESURE PAR INTERROGATION NEUTRONIQUE. A DROITE, UN GRAPHIQUE MONTRANT L'EVOLUTION DU FLUX DE NEUTRONS THERMIQUES ET EPITHERMIQUES EN FONCTION DU TEMPS PENDANT ET APRES LES IMPULSIONS DU GENERATEUR QUI S'ETENDENT DE 0 A 200 $\mu$ S ENVIRON [45]..... | 42 |
| FIGURE 32 : EN HAUT, UNE SONDE RADIOMETRIQUE PAR ACTIVATION NEUTRONIQUE (PGNA) ET PAR NEUTRONS PROMPTS DE FISSION (PFN) –EN BAS, UN SCHEMA ET PRINCIPE DU PROCEDE QUI INCLUT AUSSI DES MESURES DE DENSITE, POROSITE, HYDROGENE, ETC. [43].....   | 42 |

|   |    |
|---|----|
| FIGURE 33 : SEL D'URANIUM EN SOLUTION AQUEUSE : LES 4 VALENCES DE L'URANIUM .....   | 43 |
| FIGURE 34 : PHOTOGRAPHIES DU DETECTEUR COAXIAL (A GAUCHE), DU DETECTEUR BEGE (AU CENTRE) ET DU DETECTEUR LABR3 (A DROITE) LORS DES MESURES DES BLOCS ETALONS A BESSINES.....  | 44 |
| FIGURE 35 : SPECTRES MESURES GRACE A UN DETECTEUR GEHP COAXIAL DES BLOCS ETALONS DE BESSINES NORMALISES A 1 PPM <sub>U</sub> . DIFFERENTES INFORMATIONS RELATIVES A LA TENEUR EN URANIUM SERONT ETUDIEES LORS DE LA THESE ET SONT ANNOTEES DANS CETTE FIGURE TELLES QUE LA DEFORMATION DU CONTINUUM COMPTON OU ENCORE LES RAIES X DE FLUORESCENCE DE L'URANIUM. ....  | 45 |
| FIGURE 36 : MODELE MCNP DE LA MESURE D'UN ECHANTILLON "TYPE". .....   | 52 |
| FIGURE 37 :SPECTRE MCNP DE LA MESURE D'UN ECHANTILLON "TYPE". .....   | 53 |
| FIGURE 38 : A GAUCHE, L'EFFET DE LA HAUTEUR DE REMPLISSAGE SUR LE TAUX DE COMPTAGE DE L'AIRE NETTE DE LA RAIE A 1001 KEV POUR UNE DENSITE DE 1.4. A DROITE, L'EFFET DE LA TENEUR EN URANIUM ET DE LA DENSITE DE L'ECHANTILLON SUR LE TAUX DE COMPTAGE DE L'AIRE NETTE DE LA RAIE A 1001 KEV POUR UNE HAUTEUR DE REMPLISSAGE DE 6 CM.....  | 54 |
| FIGURE 39 : COEFFICIENT D'ETALONNAGE CE <sub>1001</sub> EN FONCTION DE LA TENEUR EN URANIUM ET DE LA DENSITE DE L'ECHANTILLON POUR UNE HAUTEUR DE REMPLISSAGE DE 6 CM. ....   | 54 |
| FIGURE 40 : COEFFICIENT D'ETALONNAGE CE <sub>1001</sub> EN FONCTION DE LA HAUTEUR DE REMPLISSAGE POUR DEUX TENEURS EN URANIUM. ...  | 55 |
| FIGURE 41 : SPECTRES MCNP D'EMISSION DES DEUX CHAINES DE FILIATION DE L'URANIUM POUR L'ECHANTILLON DECRIT AU § II.2.1. EN VERT, LE SPECTRE INDUIT PAR LA CHAINE DE FILIATION DE L' <sup>235</sup> U ET EN BLEU LE SPECTRE INDUIT PAR LA CHAINE DE FILIATION DE L' <sup>238</sup> U. EN ROUGE, LE SPECTRE TOTAL D'EMISSION DES DEUX CHAINES CONVOLVE PAR LA RESOLUTION DU DETECTEUR. ....  | 55 |
| FIGURE 42 : INTENSITE D'EMISSION GAMMA DU <sup>234</sup> Th SUIVANT LA BIBLIOTHEQUE DE DONNEES EXPLOITEE .....  | 56 |
| FIGURE 43 : EFFET DE LA HAUTEUR DE REMPLISSAGE SUR LE SIGNAL DE LA RAIE A 92 KEV. ....  | 58 |
| FIGURE 44 : EFFET DE LA DENSITE SUR LE SIGNAL DE LA RAIE A 92 KEV. ....   | 58 |
| FIGURE 45 : COEFFICIENT D'ATTENUATION MASSIQUE POUR DIFFERENTES MINERALOGIES.....   | 59 |
| FIGURE 46 : EFFET DE LA MINERALOGIE ENTRE 90 ET 100 KEV.....  | 59 |
| FIGURE 47 : COEFFICIENT D'ETALONNAGE CE <sub>92</sub> EN FONCTION DE LA DENSITE ET DE LA TENEUR EN URANIUM DE L'ECHANTILLON. ....   | 60 |
| FIGURE 48 : COEFFICIENT D'ETALONNAGE CE <sub>92</sub> EN FONCTION DE LA HAUTEUR DE REMPLISSAGE POUR DEUX TENEURS EN URANIUM. ....   | 60 |
| FIGURE 49 : SPECTRES MCNP REPRESENTANT LA CONTRIBUTION DES 4 EMISSIONS PRESENTES DANS LA RAIE A 98 KEV POUR UN ECHANTILLON DE REFERENCE EN EQUILIBRE SECLAIRE. EN BLEU, LE SPECTRE INDUIT PAR LA CHAINE DE FILIATION DE L' <sup>238</sup> U ET EN VERT LE SPECTRE INDUIT PAR LA CHAINE DE FILIATION DE L' <sup>235</sup> U. POUR CES DEUX SPECTRES, LA RESOLUTION DU DETECTEUR N'EST PAS PRISE EN COMPTE AFIN D'APPRECIER LA CONTRIBUTION DE CHAQUE EMISSION. EN ROUGE, LE SPECTRE TOTAL PREND LUI EN COMPTE LA RESOLUTION DU DETECTEUR. .... | 61 |
| FIGURE 50 : DECALAGES ENERGETIQUES DES RAIES DE FLUORESCENCE X ENTRE MCNP ET LA TABLE DES ISOTOPES [47]. ....   | 62 |
| FIGURE 51 : SPECTRE OBTENU POUR UNE SOURCE MONO-ENERGETIQUE DE 200 KEV AVEC UN ECHANTILLON DE 1 000 PPM <sub>U</sub> . ....   | 63 |
| FIGURE 52 : RENDEMENTS DE FLUORESCENCE POUR L'ECHANTILLON « TYPE » CALCULE A DIFFERENTES ENERGIES ET POUR 2 TENEURS EN URANIUM.....   | 63 |
| FIGURE 53 : EFFET DE LA DENSITE SUR LE RENDEMENT DE FLUORESCENCE A 1 000 PPM <sub>U</sub> .....   | 64 |
| FIGURE 54 : EFFET DE LA HAUTEUR DE REMPLISSAGE SUR LE RENDEMENT DE FLUORESCENCE A 1 000 PPM <sub>U</sub> .....  | 64 |
| FIGURE 55 : EFFET DE LA HAUTEUR DE REMPLISSAGE SUR LE SIGNAL DE LA RAIE A 98 KEV. ....  | 66 |
| FIGURE 56 : EFFET DE LA DENSITE SUR LE SIGNAL DE LA RAIE A 98 KEV. ....   | 67 |
| FIGURE 57 : COEFFICIENT D'ETALONNAGE CE <sub>98</sub> EN FONCTION DE LA DENSITE ET DE LA TENEUR EN URANIUM DE L'ECHANTILLON. ....   | 68 |
| FIGURE 58 : COEFFICIENT D'ETALONNAGE CE <sub>98</sub> EN FONCTION DE LA HAUTEUR DE REMPLISSAGE POUR DEUX TENEURS EN URANIUM. ....   | 68 |
| FIGURE 59 : MODELE MCNP DES HETEROGENEITES H1 ET H2. DANS LE CAS H1 TOUT L'URANIUM EST DANS LA PEPITE. DANS LE CAS H2, L'URANIUM EST REPARTI DANS LA PEPITE ET DANS LE SABLE SiO <sub>2</sub> . ....  | 69 |
| FIGURE 60 : MODELE MCNP DES TRANSLATIONS HORIZONTALES DE LA PEPITE.....   | 71 |
| FIGURE 61 : MODELE MCNP DES TRANSLATIONS VERTICALES DE LA PEPITE .....  | 72 |
| FIGURE 62 : SCHEMAS ET PHOTOGRAPHIES DE LA GEOMETRIE DE MESURE. ....  | 73 |
| FIGURE 63 : MISE EN FORME TRAPEZOÏDALE DE L'IMPULSION ET PUR GUARD [49] .....   | 74 |
| FIGURE 64 : CONCENTRATION MASSIQUE CM <sub>U</sub> (92 KEV) EN FONCTION DE LA CONCENTRATION MASSIQUE CM <sub>U</sub> THEORIQUE.....   | 75 |
| FIGURE 65 : CONCENTRATION MASSIQUE CM <sub>U</sub> (98 KEV) EN FONCTION DE LA CONCENTRATION MASSIQUE CM <sub>U</sub> THEORIQUE.....   | 76 |
| FIGURE 66 : MESURE DE L'EFFICACITE DE DETECTION A 30 CM. A DROITE, LE PORTE SOURCE ET A GAUCHE LE FALCON 5000 .....   | 78 |
| FIGURE 67 : RESOLUTION EXPERIMENTALE ET CALCULEE SUITE A L'ETUDE PARAMETRIQUE.....  | 78 |

|  |     |
|--|-----|
| FIGURE 68 : EFFICACITE DE DETECTION EXPERIMENTALE A 10 ET 30 CM .....  | 79  |
| FIGURE 69 : FALCON 5000 - MODELISATION MCNP (MOD01) .....  | 80  |
| FIGURE 70 : REPRESENTATION SCHEMATIQUE DU FLUX GAMMA AU SEIN DU DETECTEUR POUR DES RAYONNEMENTS $\gamma$ DE DIFFERENTES ENERGIES EN INCIDENCE NORMALE DANS LE CRISTAL GE .....   | 81  |
| FIGURE 71 : SCAN LATERAL DE CRISTAL DE GERMANIUM .....   | 82  |
| FIGURE 72 : SCAN FRONTAL DU DETECTEUR FALCON 5000 .....  | 82  |
| FIGURE 73 : SCAN LATERAL DU DETECTEUR FALCON 5000 .....  | 83  |
| FIGURE 74 : MODELISATION MCNP DES ZONES MORTES (MOD02) .....   | 84  |
| FIGURE 75 : ECHANTILLOTHEQUE DE BESSINES ET ECHANTILLONS SELECTIONNES POUR L'ETUDE .....   | 86  |
| FIGURE 76 : NOUVELLE GEOMETRIE DE MESURE .....   | 87  |
| FIGURE 77 : COMPARAISON DU SPECTRE EXPERIMENTAL ET SIMULE POUR L'ECHANTILLON N°35 DE 700 PPM <sub>U</sub> .....  | 87  |
| FIGURE 78 : COMPARAISON DU SPECTRE EXPERIMENTAL ET SIMULE POUR L'ECHANTILLON N°35 DE 700 PPM <sub>U</sub> ENTRE 70 KEV ET 150 KEV .....  | 88  |
| FIGURE 79 : CONCENTRATION MASSIQUE CM <sub>U</sub> (1001 KEV) EN FONCTION DE LA CONCENTRATION MASSIQUE CM <sub>U</sub> DE REFERENCE (ICP-MS) .....   | 89  |
| FIGURE 80 : CONCENTRATION MASSIQUE CM <sub>U</sub> (92 KEV) EN FONCTION DE LA CONCENTRATION MASSIQUE DE REFERENCE (ICP-MS) .....   | 90  |
| FIGURE 81 : CONCENTRATION MASSIQUE CM <sub>U</sub> (98 KEV) EN FONCTION DE LA CONCENTRATION MASSIQUE DE REFERENCE (ICP-MS) .....   | 90  |
| FIGURE 82 : PERTES DE COMPTAGE DANS L'AIRE NETTE A 1112 KEV EN FONCTION DU TAUX DE COMPTAGE TOTAL. LA VALEUR DU TEMPS MORT ASSOCIE A CHAQUE MESURE EST ENCADREE. ....  | 92  |
| FIGURE 83 : AIRE NETTE A 1112 KEV NORMALISEE A L'AIRE NETTE DE REFERENCE S <sub>N</sub> (REF) EN FONCTION DU LT TRIM .....   | 93  |
| FIGURE 84 : TENEURS EN URANIUM CM <sub>U</sub> (1001 KEV), CM <sub>U</sub> (92 KEV) ET CM <sub>U</sub> (98 KEV) CALCULEES EN FONCTION DE LA TENEUR ICP-MS POUR 7 ECHANTILLONS AVEC LT TRIM = 500 ET LT TRIM =900 .....                         | 94  |
| FIGURE 85 : TENEURS CM <sub>U</sub> (1001 KEV), CM <sub>U</sub> (92 KEV) ET CM <sub>U</sub> (98 KEV) EN FONCTION DE LA TENEUR EN URANIUM DE REFERENCE CM <sub>U</sub> (ICP-MS) AVEC LES DEUX CONFIGURATIONS DES PARAMETRES D'ACQUISITION ..... | 95  |
| FIGURE 86 : MESURE DE L'EFFICACITE DE DETECTION A 30 CM. ....  | 106 |
| FIGURE 87 : RESOLUTIONS EXPERIMENTALE ET CALCULEE SUITE A L'ETUDE PARAMETRIQUE REALISEE AVEC LE SOLVEUR EXCEL .....  | 107 |
| FIGURE 88 : EFFICACITE DE DETECTION EXPERIMENTALE A 30 CM .....  | 108 |
| FIGURE 89 : NAI - DONNEES CONSTRUCTEUR ET MODELISATION MCNP ASSOCIEE (MOD01-NAI) .....   | 108 |
| FIGURE 90 : EFFICACITES EXPERIMENTALE ET MODELISEE A 30 CM .....   | 109 |
| FIGURE 91 : MODELE MCNP DE LA MESURE D'UN ECHANTILLON "TYPE" ET PHOTOGRAPHIE DE LA SCENE DE MESURE .....   | 110 |
| FIGURE 92 : COMPARAISON DU SPECTRE MCNP ET SPECTRE EXPERIMENTAL POUR UN ECHANTILLON DE 700 PPM <sub>U</sub> POUR UN DESEQUILIBRE SIMULE U/RN = 1.0 .....   | 111 |
| FIGURE 93 : COMPARAISON DU SPECTRE MCNP ET SPECTRE EXPERIMENTAL POUR UN ECHANTILLON DE 700 PPM <sub>U</sub> POUR UN DESEQUILIBRE SIMULE U/RN = 1.1 .....   | 111 |
| FIGURE 94 : SPECTRES SIMULES DES 5 GROUPES DE NUCLEIDES POUR L'ECHANTILLON « TYPE » DE 1000 PPM <sub>U</sub> EN EQUILIBRE, 15 PPM <sub>TH</sub> ET 3 % DE K (SEGMENTATION DE 2 KEV/CANAL) .....  | 112 |
| FIGURE 95 : SPECTRES SIMULES DES 5 GROUPES DE NUCLEIDES POUR L'ECHANTILLON "TYPE" ENTRE 0 ET 250 KEV .....   | 112 |
| FIGURE 96 : EVOLUTION DU RATIO C <sub>U</sub> /C <sub>RN</sub> EN FONCTION DU DESEQUILIBRE ENTRE <sup>238</sup> U ET <sup>214</sup> Bi .....   | 117 |
| FIGURE 97 : SPECTRE NAI DE DIFFERENTES TENEURS EN URANIUM NORMALISEES A CETTE MEME TENEUR .....  | 119 |
| FIGURE 98 : VARIATION DU COEFFICIENT CORRECTIF K <sub>CMU0</sub> EN FONCTION DE LA TENEUR EN URANIUM CALCULEE AVEC LES COEFFICIENTS A ET B DE L'ECHANTILLON TYPE DE 1 000 PPM <sub>U</sub> .....   | 120 |
| FIGURE 99 : COEFFICIENT CORRECTIF K <sub>CMU0</sub> EN FONCTION DE TROIS HAUTEURS DE REMPLISSAGE : 1 CM, 5 CM ET 9 CM. ....  | 121 |
| FIGURE 100 : EFFET DE LA HAUTEUR DE REMPLISSAGE SUR LES COEFFICIENTS A ET B .....  | 122 |
| FIGURE 101 : VARIATION DU COEFFICIENT CORRECTIF DE LA HAUTEUR DE REMPLISSAGE DE L'ECHANTILLON K <sub>H</sub> EN FONCTION DE LA HAUTEUR DE REMPLISSAGE .....  | 122 |
| FIGURE 102 : EFFET DE LA DENSITE SUR LES COEFFICIENTS A ET B .....   | 123 |
| FIGURE 103 : VARIATION DU COEFFICIENT CORRECTIF DE LA DENSITE K <sub>D</sub> EN FONCTION DE LA DENSITE .....   | 124 |
| FIGURE 104 : MODELE MCNP DES HETEROGENEITES H1 ET H2. DANS LE CAS H1 TOUT L'URANIUM EST DANS LA PEPITE. DANS LE CAS H2, L'URANIUM EST REPARTI DANS LA PEPITE ET DANS LE SABLE SiO <sub>2</sub> .....   | 124 |



|   |     |
|---|-----|
| FIGURE 105 : SPECTRES MCNP REPRESENTANT LES HETEROGENEITES H1 ET H2 AINSI QUE LE CAS DE REFERENCE HOMOGENE .....  | 125 |
| FIGURE 106 : SPECTRES ISSUS DE L'ECHANTILLON TYPE POUR DIFFERENTS DESEQUILIBRES U/RN NORMALISES A CE MEME DESEQUILIBRE.<br>.....  | 126 |
| FIGURE 107 : INCERTITUDE RELATIVE INDUITE SUR LE RATIO DES ACTIVITES $D = U/RN$ POUR UNE VARIATION STATISTIQUE DU RATIO $C_U/C_{RN}$<br>DE +/-1 %.....  | 127 |
| FIGURE 108 : INCERTITUDE RELATIVE INDUITE SUR LE RATIO DES ACTIVITES $D = U/RN$ POUR UNE VARIATION STATISTIQUE DU RATIO $C_U/C_{RN}$<br>DE +/-3 %.....  | 127 |
| FIGURE 109 : $CM_U(BE)$ MESUREE AVEC LA METHODE PAR BANDES D'ENERGIE POUR TOUS LES ECHANTILLONS EN FONCTION DE LA TENEUR<br>DE REFERENCE (ICP-MS) .....   | 130 |
| FIGURE 110 : DIFFERENTES ZONES « URANIUM » SELECTIONNEES POUR L'ETUDE PAR BANDES D'ENERGIE .....  | 131 |
| FIGURE 111 : FACTEUR CORRECTIF $K_{U2}$ OBTENU AVEC LA REGRESSION MULTI-LINEAIRE EN FONCTION DU FACTEUR CORRECTIF K CALCULE<br>PAR SIMULATION MCNP (REFERENCE).....   | 132 |
| FIGURE 112 : FACTEUR CORRECTIF $K_{U3}$ OBTENU AVEC LA REGRESSION MULTI-LINEAIRE EN FONCTION DU FACTEUR CORRECTIF K CALCULE<br>PAR SIMULATION MCNP (REFERENCE).....   | 132 |
| FIGURE 113 : $CM_U(BE)$ MESUREE POUR TOUS LES ECHANTILLONS AVEC LA ZONE « URANIUM 2 » EN FONCTION DE LA TENEUR DE<br>REFERENCE (ICP-MS) .....   | 133 |
| FIGURE 114 : $CM_U(BE)$ MESUREE POUR TOUS LES ECHANTILLONS AVEC LA ZONE « URANIUM 3 » EN FONCTION DE LA TENEUR DE<br>REFERENCE (ICP-MS) .....   | 133 |
| FIGURE 115 : PRINCIPE D'UN CODEUR WILKINSON [59] .....  | 135 |
| FIGURE 116 : TENEURS EN URANIUM $CM_U(ZONE U3)$ OBTENUES AVEC LES DEUX EMBASES UNISPEC ET OSPREY PAR RAPPORT A LA<br>TENEUR DE REFERENCE OBTENUE PAR ICP-MS. ....   | 136 |
| FIGURE 117 : SPECTRES OSPREY ET UNISPEC POUR L'ECHANTILLON N°16 DE 98457 PPM <sub>U</sub> . ....  | 137 |
| FIGURE 118 : SPECTRES OSPREY ET UNISPEC POUR L'ECHANTILLON N°35 DE 700 PPM <sub>U</sub> . ....  | 137 |
| FIGURE 119 : INCERTITUDE INDUITE SUR LE RATIO DES ACTIVITES $D = U/RN$ POUR UNE VARIATION STATISTIQUE DU RATIO $C_U/C_{RN}$ DE +/-1<br>% .DANS LE CAS DE L'UTILISATION DE LA ZONE U3. ....                        | 139 |
| FIGURE 120 : INCERTITUDE INDUITE SUR LE RATIO DES ACTIVITES $D = U/RN$ POUR UNE VARIATION STATISTIQUE DU RATIO $C_U/C_{RN}$ DE +/-3<br>% .DANS LE CAS DE L'UTILISATION DE LA ZONE U3. ....                        | 139 |
| FIGURE 121 : SCHEMA EXPLICATIF D'UNE JONCTION PN .....  | 152 |
| FIGURE 122 : IMPULSION D'ENTREE D'UN DETECTEUR GEHP ET MISE EN FORME TRAPEZOÏDALE. TYPIQUEMENT, DURANT LA THÈSE, RISE<br>TIME = FALL TIME = 5.6 $\mu$ S ET FLAT TOP = 0.8 $\mu$ S. ....                           | 154 |
| FIGURE 123 : DIFFERENTS TYPE DE DETECTEURS GERMANIUM COMMERCIALISES PAR CANBERRA.....   | 155 |
| FIGURE 124 : 8 COMPOSANTES SPECTRALES CALCULE GRACE A L'ACP SUR DES MESURES AEROPORTEES REALISEES AU NEVADA [29] ...  | 157 |
| FIGURE 125 : GEOMETRIE DE MESURE DE REFERENCE .....   | 158 |
| FIGURE 126 : NOUVELLE GEOMETRIE DE MESURES.....   | 160 |
| FIGURE 127 : DESCRIPTION DE LA GEOMETRIE DE MESURE AVEC LE LOGICIEL ISOCS/LABSOCS. ....   | 163 |
| FIGURE 128 : EFFICACITE CALCULEE PAR ISOCS/LABSOCS. ....  | 163 |
| FIGURE 129 : SCHEMA DE PRINCIPE DE L'OBTENTION DE LA SURFACE NETTE S EN SOUSTRAYANT LE CONTINUUM COMPTON B .....  | 164 |
| FIGURE 130 : GAINS EN TEMPS D'ACQUISITION DE LA METHODE BASEE SUR LA RAIE A 92 KEV PAR RAPPORT A LA METHODE DE REFERENCE<br>BASEE SUR LA RAIE A 1001 KEV, POUR LES ECHANTILLONS MESURES PAR ORANO ET AU LMN ..... | 165 |
| FIGURE 131 : GAINS EN TEMPS D'ACQUISITION DE LA METHODE BASEE SUR LA RAIE A 92 KEV PAR RAPPORT A LA METHODE DE REFERENCE<br>BASEE SUR LA RAIE A 1001 KEV, POUR LES ECHANTILLONS MESURES PAR ORANO ET AU LMN ..... | 166 |
| FIGURE 132 : ANALYSEUR A FLUORESCENCE X NITON XL2 GOLDD, DE THERMOFISHER SCIENTIFIC .....   | 167 |
| FIGURE 133 : ELEMENTS MESURABLES PAR L'ANALYSEUR A FLUORESCENCE X .....   | 168 |
| FIGURE 134 : GEOMETRIE DE MESURE DES ECHANTILLONS PAR FLUORESCENCE X LORS DE L'UTILISATION D'UNE ENCEINTE DE PROTECTION<br>(EN PHOTO A GAUCHE).....   | 168 |
| FIGURE 135 : SPECTRE OBTENU SUITE A UNE MESURE DE 30 SECONDES AVEC L'ANALYSEUR ET L'ECHANTILLON N°35 (700 PPM <sub>U</sub> ) .....  | 169 |
| FIGURE 136 : TENEUR MESUREE AVEC L'ANALYSEUR A FLUORESCENCE X VS. TENEUR DE REFERENCE.....  | 169 |
| FIGURE 137 : DISTRIBUTION DES TENEURS OBTENUES SUITE A 100 MESURES SUR L'ECHANTILLON N°35.....  | 170 |
| FIGURE 138: COEFFICIENT D'ATTENUATION LINEIQUE $\mu(cm^{-1})$ DANS LE PVC DE DENSITE 1.3 EN FONCTION DE L'ENERGIE DE LA PARTICULE<br>INCIDENTE .....  | 172 |

|  |     |
|--|-----|
| FIGURE 139: SPECTRES MCNP ET EXPERIMENTAL DU $^{60}\text{Co}$ .....  | 176 |
| FIGURE 140: SPECTRES MCNP ET EXPERIMENTAL DE L' $^{152}\text{Eu}$ .....  | 176 |
| FIGURE 141 : SPECTRES MCNP ET EXPERIMENTAL DE L' $^{88}\text{Y}$ .....   | 177 |
| FIGURE 142 : SPECTRES MCNP ET EXPERIMENTAL DE L' $^{241}\text{Am}$ .....   | 177 |
| FIGURE 143 : SPECTRES MCNP ET EXPERIMENTAL DU $^{137}\text{Cs}$ .....  | 178 |
| FIGURE 144: SPECTRES MCNP ET EXPERIMENTAL DU $^{133}\text{Ba}$ .....   | 178 |
| FIGURE 145: VARIATION DU FACTEUR CORRECTIF K POUR LA ZONE U2 EN FONCTION DE 6 DENSITES POUR 13 TENEURS EN URANIUM ET 9 HAUTEURS DE REMPLISSAGE .....   | 179 |
| FIGURE 146: VARIATION DU FACTEUR CORRECTIF K POUR LA ZONE U3 EN FONCTION DE 6 DENSITES POUR 13 TENEURS EN URANIUM ET 9 HAUTEURS DE REMPLISSAGE .....   | 180 |
| FIGURE 147 : COMPARAISON DU SPECTRE EXPERIMENTAL ISSUE D'UNE MESURE NAI AVEC L'EMBASE OSPREY ET DU SPECTRE SIMULE PAR MCNP POUR L'ECHANTILLON N°35 DE 700 PPM <sub>U</sub> . .....   | 181 |
| FIGURE 148 : COMPARAISON DU SPECTRE EXPERIMENTAL ISSU D'UNE MESURE NAI AVEC L'EMBASE OSPREY ET DU SPECTRE SIMULE PAR MCNP POUR L'ECHANTILLON N°16 DE 98 457 PPM <sub>U</sub> . .....   | 182 |
| FIGURE 149 : COMPARAISON DU SPECTRE EXPERIMENTAL ISSU D'UNE MESURE NAI AVEC L'EMBASE OSPREY ET DU SPECTRE SIMULE PAR MCNP POUR L'ECHANTILLON N°10 DE 90 747 PPM <sub>U</sub> . .....   | 183 |
| FIGURE 150 : SPECTRES EXPERIMENTAUX DE L'ECHANTILLON N°16 AVEC LTC MODE OFF, ET LTC MODE ON POUR DIFFERENTES VALEURS DU PUR GUARD. COMPARAISON AVEC LE SPECTRE SIMULE PAR MCNP. ....   | 184 |
| FIGURE 151 : COMPARAISON DES SPECTRES $^{57}\text{Co}$ AVEC PUR GUARD ON ET OFF [49] .....   | 184 |
| FIGURE 152 : EXEMPLE TYPIQUE DU SIGNAL EN SORTIE DU PHOTOMULTIPLICATEUR D'UN NAI (100 NS PAR DIVISION) [65] .....  | 185 |
| FIGURE 153 : EXEMPLE TYPIQUE DU SIGNAL EN SORTIE DE PHOTOMULTIPLICATEUR D'UN NAI ET D'UN BGO (3.33 NS PAR DIVISION) [66] .....   | 185 |
| FIGURE 154 : SCHEMA DE PROCEDE DE LA METHODE PAR BANDES D'ENERGIE D'EVALUATION DE LA TENEUR EN URANIUM CMU (CONCENTRATION MASSIQUE) .....  | 186 |
| FIGURE 155 : ECHANTILLON TYPE LORS DE LA MESURE PAR BANDES D'ENERGIE .....   | 187 |
| FIGURE 156 : SPECTRE GAMMA OBTENU LORS DE LA METHODE PAR BANDES D'ENERGIE .....  | 187 |
| FIGURE 157 : RATIO $C_U/C_{RN}$ EN FONCTION DU DESEQUILIBRE U/RN DES ECHANTILLONS ETALONS (ICI PAR SIMULATION NUMERIQUE) ..  | 188 |
| FIGURE 158 : MODELES NUMERIQUES DES MESURES AVEC DETECTEURS NAI 2"x2" (A GAUCHE) ET 3"x3" (A DROITE).....  | 191 |
| FIGURE 159 : COMPARAISON DE DEUX SPECTRES ISSUS D'UN MEME MINERAL D'URANIUM A 700 PPM <sub>U</sub> MESURES AVEC UN DETECTEUR NAI 2"x2" OU 3"x3". A DROITE, LE NOMBRE D'IMPULSIONS DANS LES DIFFERENTES ZONES POUR LES 2 DETECTEURS AINSI QUE LE RATIO CORRESPONDANT. LE RATIO DES VOLUMES EST AUSSI REPRESENTE. .... | 191 |

## Liste des tableaux

|   |     |
|---|-----|
| TABLEAU 1 : TECHNOLOGIES EMPLOYEES POUR LA PROSPECTION MINIERE .....  | 23  |
| TABLEAU 2 : RAIES CLASSIQUEMENT UTILISEES EN SPECTROMETRIE GAMMA HAUTE RESOLUTION POUR CARACTERISER UN MINERAL<br>D'URANIUM [18], [19].....   | 29  |
| TABLEAU 3 : ZONES ENERGETIQUE SELECTIONNEES POUR UNE MESURE DE SPECTROMETRIE GAMMA AEROPORTEE [27].....   | 33  |
| TABLEAU 4 : TENEUR EN URANIUM DES 7 BLOCS ETALONS DE LA STATION D'ETALONNAGE DE BESSINES .....  | 44  |
| TABLEAU 5 : METHODES DE MESURE DANS L'INDUSTRIE D'EXTRACTION DE L'URANIUM .....   | 46  |
| TABLEAU 6 : EFFICACITE DE DETECTION A 92 KEV EN FONCTION DE LA HAUTEUR DE REMPLISSAGE, DE LA DENSITE ET DE LA TENEUR EN<br>URANIUM.....   | 57  |
| TABLEAU 7 : RECAPITULATIF DES TROIS PEPITES SIMULEES : TENEUR, MASSE D'URANIUM ET RAYON .....   | 70  |
| TABLEAU 8 : CONCENTRATIONS MASSIQUES $C_{Mu}$ CALCULEES DANS LES CAS HOMOGENE ET HETEROGENE AVEC LES RAIES A 92, 98 ET<br>1001 KEV. ENTRE PARENTHESES, LE RATIO DES TENEURS CALCULEES PAR RAPPORT A LA TENEUR VRAIE. .... | 70  |
| TABLEAU 9 : CONCENTRATIONS MASSIQUES $C_{Mu}$ (EN PPMU) CALCULEES DANS LE CAS DES TRANSLATIONS HORIZONTALES DE LA PEPITE VIA<br>LES RAIES A 92,98 ET 1001 KEV.....  | 71  |
| TABLEAU 10: CONCENTRATIONS MASSIQUES $C_{Mu}$ (EN PPMU) CALCULEES DANS LE CAS DES TRANSLATIONS HORIZONTALES DE LA PEPITE VIA<br>LES RAIES A 92,98 ET 1001 KEV.....  | 72  |
| TABLEAU 11 : 4 SOURCES UTILISEES POUR MESURER L'EFFICACITE DE DETECTION .....   | 77  |
| TABLEAU 12 : TAUX DE COMPTAGE ET LARGEUR A MI-HAUTEUR (LTMH) MESUREE POUR CHAQUE SOURCE .....   | 78  |
| TABLEAU 13 : MESURE DE L'EFFICACITE DE DETECTION A 10 ET 30 CM ASSOCIEE AU DETECTEUR FALCON 5000 .....  | 79  |
| TABLEAU 14 : COMPARAISON DES EFFICACITES DE DETECTION EXPERIMENTALES ET MODELISEES (MOD01).....   | 80  |
| TABLEAU 15 : COMPARAISON DES EFFICACITES DE DETECTION EXPERIMENTALES ET MODELISEES (MOD02).....   | 84  |
| TABLEAU 16 : RECAPITULATIF DES ECHANTILLONS A DISPOSITION AU LABORATOIRE DE MESURES NUCLEAIRES.....   | 85  |
| TABLEAU 17 : POURCENTAGE DE FLUORESCENCE INDUITE PAR CHAQUE RAIE SELECTIONNEE DANS LA FLUORESCENCE TOTALE. CAS DES DEUX<br>GEOMETRIES DE MESURES.....   | 91  |
| TABLEAU 18 : TENEURS EN URANIUM $C_{Mu}(1001 \text{ KEV})$ , $C_{Mu}(92 \text{ KEV})$ ET $C_{Mu}(98 \text{ KEV})$ CALCULEES POUR 8 ECHANTILLONS AVEC LT TRIM<br>= 500 ET LT TRIM =900.....                                | 94  |
| TABLEAU 19 : INCERTITUDES RELATIVES ASSOCIEES A $C_{Mu}(1001 \text{ KEV})$ .....  | 97  |
| TABLEAU 20 : INCERTITUDES RELATIVES ASSOCIEES A $C_{Mu}(92 \text{ KEV})$ .....  | 98  |
| TABLEAU 21 : INCERTITUDES RELATIVES ASSOCIEES A $C_{Mu}(98 \text{ KEV})$ . EN FOND VERT, LES TROIS INCERTITUDES QUI COMPOSENT<br>L'INCERTITUDE TOTALE (EN FOND GRIS-BLEU). ....   | 100 |
| TABLEAU 22 : 6 SOURCES UTILISEES POUR MESURER L'EFFICACITE DE DETECTION .....   | 106 |
| TABLEAU 23 : TAUX DE COMPTAGE ET LARGEUR A MI-HAUTEUR (LTMH) MESURES POUR CHAQUE SOURCE .....   | 107 |
| TABLEAU 24 : MESURE DE L'EFFICACITE DE DETECTION A 30 CM ASSOCIEE AU DETECTEUR NAI .....  | 108 |
| TABLEAU 25 : COMPARAISON DES EFFICACITES DE DETECTION EXPERIMENTALES ET MODELISEES (MOD01).....   | 109 |
| TABLEAU 26 : GROUPES DE NUCLEIDES SELECTIONNES POUR L'ETUDE PAR BANDES D'ENERGIE.....   | 111 |
| TABLEAU 27 : MATRICE $\epsilon$ DE L'ECHANTILLON "TYPE" (COEFFICIENTS SANS DIMENSION, REPRESENTANT DES COUPS.S <sup>-1</sup> PAR BQ).....   | 114 |
| TABLEAU 28 : MATRICE INVERSE $\epsilon^{-1}$ DE L'ECHANTILLON "TYPE" (COEFFICIENTS SANS DIMENSION).....   | 114 |
| TABLEAU 29 : CONTRIBUTION DE CHAQUE GROUPE DE NUCLEIDES DANS CHAQUE ZONE ENERGETIQUE DE L'ECHANTILLON TYPE .....  | 115 |
| TABLEAU 30 : SIMPLIFICATION DES CONTRIBUTIONS DE CHAQUE GROUPE DE NUCLEIDES DANS CHAQUE ZONE ENERGETIQUE.....   | 116 |
| TABLEAU 31 : MATRICE $\epsilon$ SIMPLIFIEE AVEC DEUX GROUPES « U » ET « RN » ET SA MATRICE INVERSE $\epsilon^{-1}$ (COEFFICIENTS SANS DIMENSION)<br>.....   | 116 |
| TABLEAU 32 : EFFET DE LA TENEUR EN URANIUM SUR LES COEFFICIENTS A ET B ET ERREUR SUR LE DESEQUILIBRE (DONC LA TENEUR EN<br>URANIUM MESUREE) DANS LE CAS D'UNE INTERPRETATION AVEC A ET B DE L'ECHANTILLON TYPE.....       | 120 |
| TABLEAU 33 : EFFET DE LA HAUTEUR DE REMPLISSAGE SUR LES COEFFICIENTS A ET B ET ERREUR SUR LE DESEQUILIBRE (DONC LA TENEUR EN<br>URANIUM MESUREE) DANS LE CAS D'UNE INTERPRETATION AVEC A ET B DE L'ECHANTILLON TYPE.....  | 121 |
| TABLEAU 34 : EFFET DE LA MINERALOGIE SUR LES COEFFICIENTS A ET B.....   | 122 |
| TABLEAU 35 : EFFET DE LA DENSITE SUR LES COEFFICIENTS A ET B ET ERREUR SUR LE DESEQUILIBRE (DONC LA TENEUR EN URANIUM<br>MESUREE) DANS LE CAS D'UNE INTERPRETATION AVEC A ET B DE L'ECHANTILLON TYPE. ....                | 123 |

|  |     |
|--|-----|
| TABLEAU 36 : EFFET DE L'HETEROGENEITE DE L'ECHANTILLON SUR LES COEFFICIENTS A ET B.....  | 125 |
| TABLEAU 37 : RECAPITULATIF DES RESULTATS DES 38 ECHANTILLONS MESURES .....   | 129 |
| TABLEAU 38 : VALEURS DES COEFFICIENTS A ET B POUR LA ZONE U1,U2 ET U3 .....  | 131 |
| TABLEAU 39 : RECAPITULATIF DES TENEURS EN URANIUM MESUREES AVEC LES ZONES U1, U2 ET U3 .....   | 134 |
| TABLEAU 40 : TAUX DE COMPTAGE DANS LA ZONE URANIUM 3, DANS LA ZONE RADON ET DANS L'AIRE NETTE A 609 KEV MESUREES LORS DE L'UTILISATION DE DEUX EMBASES : UNISPEC ET OSPREY ET TENEURS EN URANIUM CALCULEES. .... | 136 |
| TABLEAU 41 : EFFET DE LA MINERALOGIE SUR LE DESEQUILIBRE CALCULE .....   | 138 |
| TABLEAU 42 : EFFET DE L'HETEROGENEITE SUR LE DESEQUILIBRE CALCULE.....   | 138 |
| TABLEAU 43 : TEMPS DE COMPTAGE $T_{MIN}$ (EN SECONDES) NECESSAIRE POUR CHAQUE ECHANTILLON DE TENEUR INFERIEURE A 10 000 PPM <sub>U</sub> .....   | 141 |
| TABLEAU 44 : VALEURS DES COEFFICIENTS $A_i$ DE $H_{FLUO}(E)$ .....   | 159 |
| TABLEAU 45 : COMPARAISON DES RENDEMENTS DE FLUORESCENCE CALCULES PAR MCNP ET PAR LA FORMULE $H_{FLUO}(E)$ .....  | 159 |
| TABLEAU 46 : EFFET DE LA HAUTEUR DE REMPLISSAGE SUR LE COEFFICIENT CORRECTIF F (DENSITE D'ECHANTILLON FIXEE A 1.4 ET TENEUR EN URANIUM A 1 000 PPM <sub>U</sub> ).....   | 160 |
| TABLEAU 47 : EFFET DE LA HAUTEUR DE REMPLISSAGE SUR LE COEFFICIENT CORRECTIF F (DENSITE D'ECHANTILLON FIXEE A 1.4 ET TENEUR EN URANIUM A 1 000 PPM <sub>U</sub> ).....   | 161 |
| TABLEAU 48 : VALEURS DES COEFFICIENTS $A_i$ DE $H_{FLUO}(E)$ POUR LA NOUVELLE GEOMETRIE DE MESURE .....  | 161 |
| TABLEAU 49 : ENERGIE DES RAYONS X (EN KEV) EMIS SUITE A DIFFERENTES TRANSITIONS ELECTRONIQUES POUR L'URANIUM.....  | 167 |
| TABLEAU 50 : TENEURS MESUREES POUR DIFFERENTES POSITIONS DE L'ECHANTILLON FACE A LA FENETRE DE L'ANALYSEUR.....  | 170 |
| TABLEAU 51 : TENEURS MESUREES POUR L'ECHANTILLON N°3 (899 PPM <sub>U</sub> ) AVEC ET SANS POT EN PVC.....  | 171 |
| TABLEAU 52 : POURCENTAGE DE RAYONS X ABSORBE APRES 1 MM DE PVC POUR 4 ENERGIES DISTINCTES. ....  | 171 |
| TABLEAU 53 : COEFFICIENTS B0 A B8 POUR LA REGRESSION MULTILINEAIRE DU RENDEMENT DE FLUORESCENCE A 185 KEV POUR LA NOUVELLE GEOMETRIE DE MESURE. ....   | 175 |
| TABLEAU 54 : VALEURS EXPERIMENTALES ET SIMULEES DU NOMBRE D'IMPULSIONS DANS LES ZONES U3 ET RN POUR L'ECHANTILLON N°35. ....   | 181 |
| TABLEAU 55 : VALEURS EXPERIMENTALES ET SIMULEES DU NOMBRE D'IMPULSIONS DANS LES ZONES U3 ET RN POUR L'ECHANTILLON N°16. ....   | 182 |
| TABLEAU 56 : VALEURS EXPERIMENTALES ET SIMULEES DU NOMBRE D'IMPULSIONS DANS LES ZONES U3 ET RN POUR L'ECHANTILLON N°10. ....   | 183 |



# Références bibliographiques

- [1] « Orano Mining – RSE 2017 | Marché de l'uranium ». [En ligne]. Disponible sur: <http://rse-mines.orano.group/FR/profil/marche-de-l-uranium.html>. [Consulté le: 20-févr-2019].
- [2] « World Uranium Mining 2016 - World Nuclear Association ». [En ligne]. Disponible sur: <http://www.world-nuclear.org/information-library/nuclear-fuel-cycle/mining-of-uranium/world-uranium-mining-production.aspx>. [Consulté le: 26-sept-2018].
- [3] IAEA et NEA, « Uranium 2018: Resources, Production and Demand », p. 462.
- [4] ORANO, « De l'exploration au recyclage - Expertise sur tout le cycle », [www.orano.group.fr](http://www.orano.group.fr). [En ligne]. Disponible sur: <https://www.orano.group/fr/expertise-sur-tout-le-cycle/exploration-recyclage/producteur-uranium#Activits>. [Consulté le: 20-févr-2019].
- [5] « Pechblende », *Wikipédia*. 22-févr-2018.
- [6] « Nuclear Data ». [En ligne]. Disponible sur: <http://nucleardata.nuclear.lu.se/>. [Consulté le: 12-déc-2017].
- [7] T. Boulesteix *et al.*, « Ilmenites and their alteration products, sinkholes for uranium and radium in roll-front deposits after the example of South Tortkuduk (Kazakhstan) », vol. To be published.
- [8] « Chaîne de désintégration — Wikipédia ». [En ligne]. Disponible sur: [https://fr.wikipedia.org/wiki/Cha%C3%A9ne\\_de\\_d%C3%A9sint%C3%A9gration](https://fr.wikipedia.org/wiki/Cha%C3%A9ne_de_d%C3%A9sint%C3%A9gration). [Consulté le: 04-janv-2018].
- [9] Organisation internationale de normalisation, « NF ISO 18589-3 ». août-2015.
- [10] M. Ivanovich et R. S. Harmon, *Uranium-series Disequilibrium: Applications to Earth, Marine, and Environmental Sciences*. Clarendon Press, 1992.
- [11] « Cloudylabs - Les minéraux radioactifs ». [En ligne]. Disponible sur: <http://www.cloudylabs.fr/wp/mineral/>. [Consulté le: 09-janv-2018].
- [12] M. V. Ragnarsdottir, « Déséquilibres des séries de l'uranium dans les aquifères: quantification des mécanismes de transport de l'uranium et de ses descendants Cas de l'aquifère de la craie (Champagne, France) », PhD Thesis, Bristol university, UK, 2005.
- [13] G. Gilmore et J. D. Hemingway, *Practical gamma-ray spectrometry*. Chichester ; New York : Wiley, 1995.
- [14] C. Carasco, B. Perot, J.-L. Ma, H. Toubon, et A. Dubille-Auchere, « Improving Gross Count Gamma-Ray Logging in Uranium Mining With the NGRS Probe », *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 65, n° 3, p. 919-923, mars 2018.
- [15] J. Thommeret, « Évaluation de la teneur en uranium des minerais par la mesure des rayonnements nucléaires », *J Phys Radium*, vol. 10, n° 7-9, p. 249–252, 1949.
- [16] « Falcon 5000® Portable HPGe-Based Radionuclide Identifier - CANBERRA Industries ». [En ligne]. Disponible sur: <https://www.mirion.com/products/falcon-portable-hpge-based-radionuclide-identifier>.
- [17] T. Marchais *et al.*, « Detailed MCNP Simulations of Gamma-Ray Spectroscopy Measurements With Calibration Blocks for Uranium Mining Applications », *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, vol. 65, n° 9, p. 2533-2538, sept. 2018.
- [18] H. Yücel, A. N. Solmaz, E. Köse, et D. Bor, « Spectral interference corrections for the measurement of <sup>238</sup>U in materials rich in thorium by a high resolution  $\gamma$ -ray spectrometry », *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 67, n° 11, p. 2049-2056, nov. 2009.
- [19] S. H. Alharbi et R. A. Akber, « Broad-energy germanium detector for routine and rapid analysis of naturally occurring radioactive materials », *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 311, n° 1, p. 59-75, janv. 2017.
- [20] MIRION Technologies, « ISOCS– Model S573 ISOCS, Calibration Software ». avr-2013.
- [21] « MCNP6TM, User's manual – Version 1.0 - LA-CP-13-00634, Rev. 0 – May 2013 – Denise B. Pelowitz, editor ». Los Alamos National Laboratory.
- [22] B. D. Milbrath, B. J. Choate, J. E. Fast, W. K. Hensley, R. T. Kouzes, et J. E. Schweppe, « Comparison of LaBr<sub>3</sub>:Ce and NaI(Tl) - Scintillators for Radio-Isotope - Identification Devices », Pacific Northwest National Laboratory, PNNL-15831.
- [23] K. Saini et B. S. Bajwa, « Mapping natural radioactivity of soil samples in different regions of Punjab, India », *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 127, p. 73-81, sept. 2017.
- [24] S. Gugula, K. Kozak, J. Mazur, D. Grządziel, et M. Mroczek, « Fast in situ gamma spectroscopy using hand-held spectrometer with NaI probe », *J. Environ. Radioact.*, oct. 2017.

- [25] S. Baccouche, D. Al-Azmi, N. Karunakara, et A. Trabelsi, « Application of the Monte Carlo method for the efficiency calibration of CsI and NaI detectors for gamma-ray measurements from terrestrial samples », *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 70, n° 1, p. 227-232, janv. 2012.
- [26] A. Sardet *et al.*, « Gamma signatures of the C-BORD Tagged Neutron Inspection System », *EPJ Web Conf.*, vol. 170, p. 07011, 2018.
- [27] Internationale Atomenergie-Organisation, Éd., *Airborne gamma ray spectrometer surveying*. Vienna, 1991.
- [28] G. Erdi-Krausz, M. Matolin, B. Minty, J. P. Nicolet, W. S. Reford, et E. M. Schetselaar, *Guidelines for radioelement mapping using gamma ray spectrometry data*. Vienna: International Atomic Energy Agency (IAEA), 2003.
- [29] J. Hovgaard et R. L. Grasty, « Reducing statistical noise in airborne gamma-ray data through spectral component analysis », in *Proceedings of exploration*, 1997, vol. 97, p. 753-764.
- [30] I. M. Omoniyi, S. M. B. Oludare, et O. M. Oluwaseyi, « Determination of radionuclides and elemental composition of clay soils by gamma- and X-ray spectrometry », *SpringerPlus*, vol. 2, févr. 2013.
- [31] J. Asfahani, R. Al-Hent, et M. Aissa, « Radioactive and geological analysis of airborne gamma spectrometric data for locating favorable traps for uranium prospecting in the Syrian desert (Area-1), Syria », *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 70, n° 10, p. 2317-2327, oct. 2012.
- [32] D. Srinivas, V. Ramesh Babu, I. Patra, S. Tripathi, M. S. Ramayya, et A. K. Chaturvedi, « Assessment of background gamma radiation levels using airborne gamma ray spectrometer data over uranium deposits, Cuddapah Basin, India – A comparative study of dose rates estimated by AGRS and PGRS », *J. Environ. Radioact.*, vol. 167, p. 1-12, févr. 2017.
- [33] A. A. Elkhadragey, A. A. Ismail, M. M. Eltarras, et A. A. Azzazy, « Utilization of airborne gamma ray spectrometric data for radioactive mineral exploration of G.Abu Had – G.Umm Qaraf area, South Eastern Desert, Egypt », *NRIAG J. Astron. Geophys.*, vol. 6, n° 1, p. 148-161, juin 2017.
- [34] J. M. DOMINGOS et A. A. MELO, « Determination of uranium and thorium ores using gamma spectrometry », *Nucl. Instrum. Methods* 48, juin 1966.
- [35] J. Bezuidenhout, « Measuring naturally occurring uranium in soil and minerals by analysing the 352 keV gamma-ray peak of  $^{214}\text{Pb}$  using a NaI(Tl)-detector », *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 80, p. 1-6, oct. 2013.
- [36] J. G. CONAWAY et P. G. KILLEN, « Gamma-ray spectral logging for uranium », *CIM Bulletin*, janv-1980.
- [37] P. Dumesnil et J.-L. Greco, « Mesure de la teneur en uranium des minerais sur camion », 1981.
- [38] IAEA, « Nuclear Techniques and Mineral Resources ». 1969.
- [39] M. Dumesnil, « Diagraphies uranifères passives ». Services d'Electronique pour les Applications Industrielles - Centre d'études nucléaires de Saclay.
- [40] Amptek Inc, « A comparison of silicon drift (SDD) and Si-PIN detectors ». [En ligne]. Disponible sur: <https://amptek.com/pdf/drift%20vs%20pin.pdf>. [Consulté le: 17-janv-2018].
- [41] M. O. Figueiredo, T. P. Silva, M. J. Batista, J. Leote, M. L. Ferreira, et V. Limpo, « Uranium in surface soils: An easy-and-quick assay combining X-ray diffraction and X-ray fluorescence qualitative data », *J. Geochem. Explor.*, vol. 109, n° 1-3, p. 134-138, avr. 2011.
- [42] ThermoFisher, « Analyseur à fluorescence X (XRF) Niton™ XL2 GOLDD ». [En ligne]. Disponible sur: <http://www.thermofisher.com/order/catalog/product/XL2GOLDDXRF>.
- [43] P. Woods, « Advancements in Exploration and In-Situ Recovery of Sedimentary-Hosted Uranium », 2014.
- [44] B. Pérot *et al.*, « The characterization of radioactive waste: a critical review of techniques implemented or under development at CEA, France », *EPJ Nucl. Sci. Technol.*, vol. 4, p. 3, 2018.
- [45] C. Skidmore, « Borehole Wire-line Logging for Uranium », SMEDG Symposium, 11-sept-2009.
- [46] R. P. Gardner et A. Sood, « On the future of Monte Carlo simulation for nuclear logs », *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 68, n° 4-5, p. 932-935, avr. 2010.
- [47] R. B. FIRESTONE, « Table of Isotopes - Eighth Edition ». Virginia S. Shirley, mars-1996.
- [48] « CA1106082A - Device for assaying uranium and/or thorium in ore specimens ».
- [49] Canberra Industries, « Model 1300 - Inspector 2000 Hardware Manual ».
- [50] T. MARCHAIS, B. PEROT, C. CARASCO, P.-G. ALLINEI, et H. TOUBON, « Procédé d'évaluation de la concentration massique en uranium d'un échantillon de minerai par spectrométrie gamma », n°18 51744.
- [51] T. MARCHAIS *et al.*, « The use of self-induced X-ray fluorescence in gamma-ray spectroscopy of uranium ore samples », *ANIMMA 2019*, n° #05-1145, juin 2019.
- [52] « Communication privée avec MIRION TECHNOLOGIES (CANBERRA) ».

- [53] N. Mh et K. Am, « Analysis of Uranium Concentration, and  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  Activity Ratio in Low Grade uranium Ore material by Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry (ICP-MS) and Gamma Ray Spectrometry Technique », vol. 4, p. 6, 2016.
- [54] J. Plagnard, J. Morel, et A. T. Tuan, « Metrological characterization of the ADONIS system used in gamma-ray spectrometry », *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 60, n° 2, p. 179-183, févr. 2004.
- [55] MIRION Technologies, « Génie 2000, Basic Spectroscopy Software ». juill-2013.
- [56] H. D. Tam, H. D. Chuong, T. T. Thanh, et C. Van Tao, « A study of the effect of  $\text{Al}_2\text{O}_3$  reflector on response function of  $\text{NaI}(\text{Tl})$  detector », *Radiat. Phys. Chem.*, vol. 125, n° Supplement C, p. 88-93, août 2016.
- [57] V. T. Jordanov et M. Kastner, « Stabilized Scintillation Detector For Radiation Spectroscopy And Method », US 7,005,646 B1, 28-févr-2006.
- [58] « *GremLin - Générateur de Régression MultiLinéaire* », Logiciel interne développé au CEA DEN/DTN/SMTA/LMN. .
- [59] W. R. Leo, *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments: A How-to Approach*. Springer Science & Business Media, 2012.
- [60] H. Karen, « Osprey Universal Digital MCA Tube Base - User's Manual - 7066438D », p. 131.
- [61] V. T. Jordanov et G. F. Knoll, « Digital synthesis of pulse shapes in real time for high resolution radiation spectroscopy », *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. Accel. Spectrometers Detect. Assoc. Equip.*, vol. 345, n° 2, p. 337-345, juin 1994.
- [62] V. T. Jordanov, G. F. Knoll, A. C. Huber, et J. A. Pantazis, « Digital techniques for real-time pulse shaping in radiation measurements », *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. Accel. Spectrometers Detect. Assoc. Equip.*, vol. 353, n° 1-3, p. 261-264, déc. 1994.
- [63] C. DUBY et S. ROBIN, « Analyse en Composantes Principales ». [En ligne]. Disponible sur: <https://www.agroparistech.fr/IMG/pdf/AnalyseComposantesPrincipales-AgroParisTech.pdf>. [Consulté le: 07-août-2017].
- [64] *MicroShield Version 7.02*. Grove software radiation software, Inc.
- [65] « Communication privée avec Cédric CARASCO (CEA Cadarache - DEN/DTN/SMTA/LMN) ».
- [66] G. F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, 2nd edition. New York: John Wiley and Sons Ltd, 1989.



## **Résumé**

Cette thèse s'inscrit dans le cadre d'une collaboration entre le CEA et ORANO Mining, visant à améliorer la sensibilité et la précision des mesures radiométriques de l'uranium dans le cadre de l'exploration et de l'exploitation minières, notamment pour les échantillons de minerai. Dans un premier temps, les méthodes de mesure nucléaire pour la prospection de l'uranium actuellement utilisées sont présentées ainsi que leurs enjeux, avant d'exposer le développement des nouvelles méthodes de spectrométrie gamma qui font l'objet de ces travaux de thèse. Elles exploitent notamment le phénomène d'auto-fluorescence X de l'uranium, dont le signal n'est actuellement pas utilisé, pour réduire les temps de mesure et en améliorer la précision. L'auto-fluorescence X, est provoquée par les rayonnements gamma d'isotopes radioactifs présents dans le minerai, comme le  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$ , créant par diffusion Compton un important continuum au-delà de la discontinuité d'absorption K de l'uranium à 115.6 keV. Il en résulte l'émission de raies X-K de fluorescence de l'uranium, autour de 100 keV, représentatives de la teneur en uranium sur une profondeur de plusieurs centimètres, ce qui est particulièrement intéressant pour la mesure des échantillons ou carottes de minerai. L'intensité de l'auto-fluorescence dépend de l'activité des isotopes radioactifs présents dans le minerai, qui peut être quantifiée par spectrométrie gamma classique via leurs raies caractéristiques, ainsi que de la densité et de la minéralogie du minerai. En plus de la teneur en uranium, il est possible de détecter une hétérogénéité, par exemple une pépite d'uranium, en comparant les teneurs déduites de la raie d'émission passive du  $^{234}\text{Th}$  à 92 keV et de la raie  $X_{K\alpha 1}$  de fluorescence de l'uranium à 98 keV. Ces premières approches par spectrométrie gamma haute résolution avec un détecteur au germanium hyper pur ont fait l'objet d'une mise au point par simulation numérique avec le code MCNP et d'une qualification expérimentale avec des spectres gamma acquis par ORANO, puis au Laboratoire de Mesures Nucléaires du CEA Cadarache avec des échantillons de minerai réels. La méthode a aussi fait l'objet d'un dépôt de demande de brevet. La thèse étudie ensuite la possibilité de caractériser la teneur en uranium et de détecter des déséquilibres potentiels avec ses descendants, comme les isotopes  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$  qui sont les principaux contributeurs au signal total, par spectrométrie gamma basse résolution avec un scintillateur NaI(Tl). Une approche par analyse de zones d'énergie du spectre gamma est développée par simulation et qualifiée en laboratoire, qui a fait aussi l'objet d'une demande de brevet. Ces nouvelles approches ont débouché sur le lancement par ORANO Mining de l'industrialisation d'un nouveau dispositif de mesure d'échantillons, ainsi que d'une nouvelle sonde gamma pour les puits de forage.

## **Summary**

This PhD thesis in the frame of CEA - ORANO Mining collaboration aimed at improving the sensitivity and precision of radiometric uranium measurements for mining exploration and exploitation, particularly for ore samples characterisation. Before explaining the development of new gamma spectrometry methods, a survey of nuclear measurement methods currently used in this field are presented as well as their limitations. The new proposed methods exploit uranium X-ray fluorescence in order to reduce measurement time and improve accuracy. Gamma radiation from radioactive isotopes of the natural uranium decay chain, such as  $^{214}\text{Pb}$  and  $^{214}\text{Bi}$ , create a large Compton scattering continuum beyond the K-absorption discontinuity at 115.6 keV, leading to X-ray fluorescence. Uranium fluorescence K lines, in the 100 keV region, are representative of the uranium concentration up to a depth of a few centimetres, which is particularly interesting for small samples and drill cores. The intensity of self-fluorescence depends on the activity of the radioactive isotopes present in the ore, which can be directly quantified by gamma spectrometry from their characteristic lines, and on the density and mineralogy of the ore. In addition to uranium content, it is possible to detect a heterogeneity, for instance a uranium nugget, by comparing the  $^{234}\text{Th}$  passive emission line at 92 keV and the uranium  $X_{K\alpha 1}$  fluorescence line at 98 keV. This high-resolution gamma spectrometry approach using a hyper-pure germanium detector has been developed by MCNP numerical simulation, and then experimentally qualified using existing gamma spectra acquired by ORANO as well as new ore sample measurements at CEA Cadarache Nuclear Measurement Laboratory. Beyond this patent pending method, the PhD thesis studies the characterization of uranium content and potential imbalances between uranium and its radioactive daughters, such as the main signal contributors  $^{214}\text{Pb}$  and  $^{214}\text{Bi}$ , by low-resolution gamma spectrometry with a NaI(Tl) scintillator. An approach based on the analysis of energy areas of the gamma spectrum has been developed by numerical simulation and experimentally qualified in the Nuclear Measurement Laboratory. This new method is also patent pending and the outcome of this PhD work is the ongoing industrialization, by ORANO Mining, of an in situ measurement system for samples, and of a new borehole gamma probe.