



HAL
open science

Contribution au développement d'une méthode de caractérisation pour des colis de déchets radioactifs bétonnés et volumineux par photofission

Manon Delarue

► **To cite this version:**

Manon Delarue. Contribution au développement d'une méthode de caractérisation pour des colis de déchets radioactifs bétonnés et volumineux par photofission. Physique [physics]. Université Grenoble Alpes [2020-..], 2022. Français. NNT : 2022GRALY060 . tel-03988583

HAL Id: tel-03988583

<https://theses.hal.science/tel-03988583v1>

Submitted on 14 Feb 2023

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

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

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES

École doctorale : PHYS - Physique
Spécialité : Physique appliquée
Unité de recherche : CEA Cadarache

Contribution au développement d'une méthode de caractérisation pour des colis de déchets radioactifs bétonnés et volumineux par photofission

Development of a characterization method for concrete radioactive waste packages using photofission

Présentée par :

MANON DELARUE

Direction de thèse :

Johann COLLOT
Professeur, Université Grenoble Alpes
Bertrand PEROT
Expert International CEA

Directeur de thèse

Co-directeur de thèse

ERIC SIMON
Expert CEA

Co-encadrant de thèse

Rapporteurs :

JEAN-CLAUDE ANGELIQUE
Professeur des Universités, ENSI CAEN
BENOÎT GALL
Professeur des Universités, UNIVERSITE STRASBOURG

Thèse soutenue publiquement le **20 octobre 2022**, devant le jury composé de :

JEAN-CLAUDE ANGELIQUE Professeur des Universités, ENSI CAEN	Rapporteur
BENOÎT GALL Professeur des Universités, UNIVERSITE STRASBOURG	Rapporteur
ABDALLAH LYOUSSI Ingénieur HDR, CEA CENTRE DE CADARACHE	Examineur
FREDERICK CARREL Ingénieur HDR, CEA CENTRE DE PARIS-SACLAY	Examineur
ELSA MERLE Professeur des Universités, GRENOBLE INP	Présidente



Remerciements

Cette thèse a été réalisée sous la direction de Johann Collot, Professeur de l'Université Grenoble Alpes, et de Bertrand Pérot, Expert International au CEA de Cadarache. Johann, je vous remercie pour vos nombreux conseils avisés et votre suivi régulier de cette thèse. Bertrand, je te suis extrêmement reconnaissante pour ta confiance, ton suivi et le partage de ton expertise au cours de ces trois années.

Je tiens également à remercier les personnes qui ont accepté de faire partie du jury de cette thèse. Tout d'abord, j'exprime ma gratitude à Elsa Merle, Professeur de Grenoble INP, pour avoir accepté d'être Présidente de ce jury. Je suis heureuse de vous retrouver quelques années après avoir assisté à vos enseignements à l'école PHELMA. Je remercie MM. Jean-Claude Angélique et Benoît Gall d'avoir été rapporteurs de cette thèse et d'avoir consacré un temps non négligeable à la relecture de ce mémoire. J'adresse mes remerciements aux examinateurs, Abdallah Lyoussi, pour vos questions très pertinentes, et Frédéric Carrel, pour votre lecture attentive du manuscrit, votre esprit critique et vos retours sur mon travail. C'est une chance pour moi d'avoir partagé mes travaux avec vous qui êtes des experts dans le domaine de la photofission.

J'adresse tous mes remerciements à mon encadrant de thèse, Éric Simon. Je suis sincèrement reconnaissante d'avoir passé ces trois années à travailler avec toi. Malgré le contexte parfois difficile marqué par la pandémie et les pannes de l'accélérateur, tu m'as aidée à mener à bien ce projet. Tu as encadré ma thèse avec patience, bienveillance et tu as su être disponible lorsque j'en avais le plus besoin.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance aux collègues du Laboratoire de Mesures Nucléaires qui m'ont grandement aidée à mener à bien cette thèse et sans qui les expériences n'auraient pas pu avoir lieu : Pierre-Guy Allinei, Emmanuel Payan, Daniel Eck, Nicolas Estre et David Tisseur. J'adresse mes remerciements chaleureux à Christophe Roure, le chef du laboratoire. Ta bienveillance, ton écoute, ta disponibilité et ta sympathie sont autant de qualités qui m'ont aidée à avancer dans ce parcours parfois difficile.

Ces trois années ont aussi été l'occasion de faire des rencontres. J'ai eu la chance de tomber sur des personnes d'une grande gentillesse, tout d'abord au CEA. Maëva, je te remercie d'avoir été ma co-bureau pendant tout ce temps, tu es devenue une amie. Joël, tu as été un soutien pendant ces trois années. Je pense aussi à Alix et Clotilde pour nos discussions et nos moments de rire qui étaient pour moi des bouffées d'air frais. Je remercie également les personnes qui ont toujours été présentes pour des moments de partage en dehors du travail. Marlène et Thibault pour nos mercredis soirs à jouer aux jeux vidéos mais aussi à partager nos galères de doctorants. Thibault, Flory et Martin pour nos soirées sur Aix et votre soutien. Marianne, pour ton amitié depuis toujours.

Enfin, je tiens à remercier les membres de ma famille pour leur soutien sans faille. Merci à mon frère Quentin, curieux des sciences et toujours prêt à discuter et échanger. Merci à mes parents, Christelle et Christophe, pour votre transmission de valeurs humaines et votre soutien constant dans l'accomplissement de mes études. La dernière personne que je souhaite remercier est mon compagnon Roberto. Ton soutien incommensurable, ta patience et ton amour sont les points clés qui m'ont permis de tenir ces trois années et de garder mon cap.

Table des matières

Remerciements	i
Table des matières	iii
Glossaire	vii
Table des figures	ix
Liste des tableaux	xiii
Introduction générale	1
1 L'Interrogation Photonique Active (IPA) et la caractérisation non-destructive des colis de déchets radioactifs	3
1.1 Les méthodes non-destructives pour la caractérisation de colis de déchets radioactifs	3
1.1.1 Colis de déchets radioactifs	3
1.1.2 Méthodes de caractérisation non-destructive passives	5
1.1.2.1 Spectrométrie gamma	5
1.1.2.2 Comptage neutronique passif	6
1.1.2.3 Calorimétrie	7
1.1.3 Méthodes de caractérisation non-destructive actives	7
1.1.3.1 Imagerie	8
1.1.3.2 Interrogation Neutronique Active (INA)	8
1.1.3.3 Activation neutronique	9
1.1.3.4 Interrogation Photonique Active (IPA)	10
1.1.4 L'utilisation de la photofission pour la caractérisation de colis de déchets radioactifs	10
1.1.4.1 Principe de la photofission	10
1.1.4.2 Caractérisation de colis de déchets radioactifs	13
1.2 Dosage et différenciation des actinides par la mesure des rayonnements gamma retardés de photofission	19
1.2.1 Dosage des actinides	19
1.2.2 Différenciation des actinides	20
1.2.2.1 Principe de la différenciation	20
1.2.2.2 Mesure du taux de production de gamma retardés à différentes énergies de faisceau	21
1.2.2.3 Comptage total des gamma de haute énergie	22
1.2.2.4 Spectrométrie gamma haute-résolution avec détecteur Ge HP	23
1.2.3 Limitations actuelles de la photofission	26
1.2.3.1 Effets de matrice et de localisation	26
1.2.3.2 Signaux additionnels	27
1.2.3.3 Données nucléaires	28
1.3 Conclusion et positionnement de la thèse	29

2	Caractérisation du faisceau du LINAC Saturne et du bruit de fond associé	31
2.1	Description de l'accélérateur linéaire d'électrons (LINAC) et des moyens de caractérisation du faisceau	31
2.1.1	Présentation de la cellule CINPHONIE et du LINAC Saturne	31
2.1.2	Caractérisation du faisceau par activation photonique et neutronique	34
2.1.2.1	Besoin de caractérisation du faisceau	34
2.1.2.2	Description du dispositif expérimental pour la caractérisation du faisceau	35
2.1.2.3	Spectres des rayonnements gamma issus des produits d'activation	40
2.2	Caractérisation des faisceaux de photons et de neutrons	43
2.2.1	Caractérisation du spectre de photons de <i>Bremsstrahlung</i>	43
2.2.1.1	Principe de la méthode	43
2.2.1.2	Campagne expérimentale de 2019	47
2.2.1.3	Campagne expérimentale de 2021	50
2.2.2	Caractérisation du spectre de neutrons	53
2.2.2.1	Principe de la méthode	53
2.2.2.2	Caractérisation du spectre neutronique et validation du modèle MCNP du dispositif d'irradiation	53
2.3	Analyse du bruit de fond actif	56
2.3.1	Bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE vide	56
2.3.2	Bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE avec une galette en béton	61
2.4	Conclusion du chapitre	64
3	Mesure des rendements cumulatifs des produits de photofission pour ^{235}U, ^{238}U et ^{239}Pu et différenciation dans des mélanges d'actinides	65
3.1	Introduction du chapitre	65
3.2	Dispositif expérimental	65
3.2.1	Échantillons d'actinides et configurations d'irradiation	65
3.2.1.1	Campagne expérimentale de 2019	65
3.2.1.2	Campagne expérimentale de 2021	67
3.2.2	Dispositifs de détection	68
3.2.2.1	Campagne expérimentale de 2019	68
3.2.2.2	Campagne expérimentale de 2021	70
3.3	Méthode de mesure des rendements de photofission cumulatifs	72
3.3.1	Contributions photoniques et neutroniques aux fissions	72
3.3.1.1	Campagne expérimentale de 2019	72
3.3.1.2	Campagne expérimentale de 2021	73
3.3.2	Résolution des équations de Bateman	75
3.3.3	Extraction des aires nettes des raies des rayonnements gamma retardés	76
3.3.4	Calcul des rendements de photofission cumulatifs et de l'incertitude associée	80
3.4	Rendements de photofission cumulatifs pour différents actinides	80
3.4.1	Introduction	80
3.4.2	Résultats avec un faisceau de <i>Bremsstrahlung</i> jusqu'à 15,8 MeV (2019)	81
3.4.2.1	^{238}U	81
3.4.2.2	^{235}U	82
3.4.3	Résultats avec un faisceau de <i>Bremsstrahlung</i> jusqu'à 17,5 MeV (2021)	82
3.4.3.1	^{238}U	82
3.4.3.2	^{235}U	83
3.4.3.3	^{239}Pu	84
3.4.4	Comparaison des résultats avec la littérature existante	84
3.4.4.1	^{238}U	84
3.4.4.2	^{235}U	86
3.4.4.3	^{239}Pu	88
3.5	Sélection de couples de produits de photofission pour la différenciation des actinides	90
3.5.1	Principe de la méthode	90

3.5.2	Mélanges d'actinides	92
3.5.2.1	Différenciation ^{235}U vs. ^{238}U	92
3.5.2.2	Différenciation entre matière fissile et fertile	95
3.5.2.3	Différenciation ^{235}U vs. ^{239}Pu	98
3.6	Conclusion du chapitre	101
4	Méthode de localisation des actinides et développements sur la correction des effets de matrice pour la différenciation et la quantification	103
4.1	Introduction	103
4.2	Méthode de localisation des actinides dans une matrice	103
4.2.1	Présentation de la méthode	103
4.2.2	Essais de localisation dans la matrice en béton	104
4.2.3	Correction des ratios de raies gamma	108
4.2.4	Limitations de la méthode	109
4.3	Différenciation et quantification des actinides au sein d'une matrice	111
4.3.1	Introduction	111
4.3.2	Différenciation des actinides	111
4.3.2.1	Uranium appauvri	111
4.3.2.2	Uranium enrichi et uranium appauvri	112
4.3.2.3	Uranium enrichi	113
4.3.2.4	Plutonium	116
4.3.3	Impact de la géométrie des actinides sur leur quantification	117
4.4	Conclusion du chapitre	123
5	Performances de la photofission en termes de limites de détection	125
5.1	Introduction du chapitre	125
5.2	Performances pour une matrice en béton	125
5.2.1	Présentation du dispositif expérimental	125
5.2.2	Estimation des limites de détection pour la matrice en béton	126
5.2.2.1	Présentation de la méthode	126
5.2.2.2	Estimation du nombre de rayonnements gamma retardés détectés	126
5.2.2.3	Comparaison expérience vs. simulation	129
5.2.2.4	Limites de détection en fonction de la profondeur	130
5.3	Estimation par simulation des limites de détection pour un colis 870 L	132
5.3.1	Modélisation d'une tranche de colis 870 L	132
5.3.2	Raies de rayonnements gamma retardés sélectionnées	133
5.3.3	Limites de détection du colis 870 L	134
5.3.4	Impact des neutrons	138
5.3.4.1	Part des fissions neutroniques	138
5.3.4.2	Évolution du flux neutronique avec la profondeur	139
5.3.4.3	Conclusion	141
5.4	Perspectives pour l'amélioration des limites de détection	141
5.4.1	Diminution du bruit de fond actif	141
5.4.2	Utilisation de scintillateurs NaI(Tl)	143
5.5	Conclusion du chapitre	146
	Conclusion et perspectives	147
	Annexes	153
A	Données détaillées de l'analyse des rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission de l'^{238}U pour les mesures de 2019	155

B	Données détaillées de l'analyse des rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission de l'²³⁵U pour les mesures de 2019	159
C	Données détaillées de l'analyse des rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission de l'²³⁸U pour les mesures de 2021	161
D	Données détaillées de l'analyse des rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission de l'²³⁵U pour les mesures de 2021	163
E	Données détaillées de l'analyse des rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission du ²³⁹Pu pour les mesures de 2021	165
F	Caractéristiques des produits de photofission utilisés pour la différenciation entre les actinides	167
G	Différenciation ²³⁸U vs. ²³⁹Pu	169
H	Différenciation dans la matrice en béton pour le cas de l'échantillon d'UA	173
I	Différenciation dans la matrice en béton pour le cas des échantillons d'UA et d'UHE combinés	179
J	Différenciation dans la matrice en béton pour le cas de l'échantillon d'UHE	183
K	Efficacité de détection en fonction de la profondeur dans la matrice de colis 870 L pour les différentes raies de gamma retardés étudiées	185

Glossaire

ANDRA : Agence Nationale pour la gestion des Déchets RAdioactifs
BDF : Bruit de fond
CEA : Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives
CEDRA : installation pour le Conditionnement et l'Entreposage des Déchets Radioactifs
CINPHONIE : Cellule d'Interrogation Photonique et Neutronique
DGNAA : *Delayed- Gamma Neutron Activation Analysis*
ENDF : *Evaluated Nuclear Data File*
FA-VL : désigne les déchets radioactifs de Faible Activité et Vie Longue
FMA-VC : désigne les déchets radioactifs de Faible et Moyenne Activité et Vie Courte
FWHM : *Full Width at Half Maximum*, correspond à la largeur totale à mi-hauteur
Ge HP : Germanium Haute-Pureté
HA : désigne les déchets radioactifs de Haute Activité
INA : Interrogation Neutronique Active
INB : Installation Nucléaire de Base
IPA : Interrogation Photonique Active
LD : Limite de Détection
LINAC : accélérateur linéaire d'électrons
MA-VL : désigne les déchets radioactifs de Moyenne Activité et Vie Longue
NAA : *Neutron Activation Analysis*
NaI(Tl) : iodure de sodium dopé au thallium
PE : Polyéthylène
PEB : Polyéthylène boré
PF : Produit de Fission
PGNAA : *Prompt- Gamma Neutron Activation Analysis*
SD : Seuil de Décision
SNAC : Spectromètre Neutron à Activation
SNM : *Special Nuclear Material*
TEP : Tomographie par Emission de Positrons
TFA : désigne les déchets radioactifs de Très Faible Activité
UA : Uranium Appauvri
UHE : Uranium Hautement Enrichi
VC : désigne les déchets radioactifs à Vie Courte
VTC : désigne les déchets radioactifs à Vie Très Courte

Table des figures

1.1	Classification des déchets radioactifs et filières de gestion associées.	4
1.2	Spectre gamma obtenu avec un détecteur Ge HP.	5
1.3	Station de spectrométrie gamma pour des colis de déchets au CEA Cadarache.	5
1.4	Principaux composants du système d'imagerie haute énergie.	8
1.5	Exemple de radiographies et de tomographies sur des colis de déchets.	8
1.6	Principe de la fission.	11
1.7	Sections efficaces de fission neutronique pour l' ²³⁵ U, l' ²³⁸ U et le ²³⁹ Pu, issues de la base de données ENDF B-VIII.0.	11
1.8	Sections efficaces de photofission pour l' ²³⁵ U, l' ²³⁸ U et le ²³⁹ Pu, issues de la base de données ENDF B-VIII.0.	11
1.9	Spectre de <i>Bremsstrahlung</i> simulé avec des électrons de 15,8 MeV et une cible en tungstène de 5 mm d'épaisseur.	13
1.10	Colis (bloc de béton TE1060) caractérisé par Carrel <i>et al.</i>	15
1.11	Distribution en masse des fragments de photofission pour les isotopes de U, Pu et Am obtenues avec le code GEF.	21
1.12	Sections efficaces de photofission pour l' ²³⁵ U, l' ²³⁸ U et le ²³² Th près du seuil, issues de la base de données ENDF B-VIII.0.	22
1.13	Spectre de gamma retardés de photofission d'un échantillon d' ²³⁸ U mesuré dans le cadre de cette thèse.	23
1.14	Rendements de produits de fission par des neutrons thermiques pour l' ²³⁵ U et le ²³⁹ Pu.	24
1.15	Spectres de bruit de fond passif et actif simulés dans le cas d'un colis 870 L.	27
2.1	Plan de la cellule CINPHONIE	31
2.2	Vue d'ensemble de la cellule CINPHONIE	32
2.3	Dimensions (en mm) de l'ouverture du collimateur en plomb.	33
2.4	Vue du LINAC et de son blindage neutronique.	34
2.5	Structure du blindage neutronique en polyéthylène.	34
2.6	Modèle MCNP du LINAC, du collimateur et du blindage neutronique.	34
2.7	Illustration du besoin de la caractérisation de la distribution en énergie des électrons du LINAC par rapport à la variation de la section efficace de photofission pour des photons de haute énergie.	35
2.8	Ensemble de pastilles SNAC 22 irradiées pour les expériences de 2019.	36
2.9	Support d'irradiation pour les pastilles SNAC en 2019.	37
2.10	Configuration de détection dans le dispositif à bas bruit de fond pour les pastilles SNAC en 2019.	37
2.11	Ensemble de pastilles irradiées pour les expériences de 2021.	38
2.12	Support d'irradiation pour les pastilles SNAC en 2021.	39
2.13	Configuration de détection dans le dispositif à bas bruit de fond pour les pastilles en 2021.	39
2.14	Spectre de rayonnements gamma d'activation pour les pastilles de matériaux non-nucléaires irradiés en 2019.	41
2.15	Raie gamma émise par l' ²³⁷ U formé par l'activation de l' ²³⁸ U pour la campagne de 2019.	41
2.16	Raies gamma émises par le produit d'activation du ⁹⁰ Zr et son descendant pour la campagne de 2019.	41
2.17	Spectre de rayonnements gamma d'activation pour les pastilles de matériaux non-nucléaires irradiés en 2021.	42

2.18	Raie gamma émise par l' ^{237}U formé par l'activation de l' ^{238}U pour la campagne de 2021.	42
2.19	Raies gamma émises par le produit d'activation du ^{90}Zr et son descendant pour la campagne de 2021.	43
2.20	Sections efficaces de réaction (γ, n) pour les isotopes d'intérêt dans la caractérisation du faisceau de photons du LINAC.	43
2.21	Simulation de l'histogramme d'énergie en sortie de section accélératrice pour un point de fonctionnement du Saturne à 15 MeV.	44
2.22	Forme de la distribution en énergie des électrons du Saturne.	44
2.23	Schéma de filiation pour la formation de ^{89}Zr par activation du ^{90}Zr	45
2.24	Représentation graphique des flux de photons calculés pour les quatre matériaux avec $\alpha = 1 \text{ MeV}$ pour la campagne de 2019.	48
2.25	Distribution en énergie des électrons et des photons de <i>Bremsstrahlung</i> du LINAC pour les expériences de 2019.	50
2.26	Représentation graphique des flux de photons calculés pour les cinq matériaux avec $\alpha = 0,5 \text{ MeV}$ pour la campagne de 2021.	51
2.27	Distribution en énergie des électrons et des photons de <i>Bremsstrahlung</i> du LINAC pour les expériences de 2021.	52
2.28	Sections efficaces de réactions neutroniques pour les matériaux irradiés.	53
2.29	Section efficace de réaction (n, γ) pour le ^{113}Cd composant le cadmium naturel à 12,26 %.	54
2.30	Comparaison des flux neutroniques calculés avec MCNP avec et sans blindage neutronique, pour la campagne de 2019.	55
2.31	Comparaison des flux neutroniques calculés avec MCNP avec et sans cadmium, pour la campagne de 2019.	55
2.32	Position d'irradiation, de comptage et schéma du dispositif de détection pour les échantillons d'actinides en 2019.	57
2.33	Configuration de la cellule CINPHONIE lors de la campagne de 2019.	57
2.34	Dispositif de détection pour la mesure du bruit de fond actif lors de la campagne de 2021.	58
2.35	Bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE vide en 2019.	58
2.36	Bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE vide en 2021.	59
2.37	Photographie de la galette de béton utilisée pour les expériences avec une matrice, décrites dans le Chapitre 4.	61
2.38	Bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE avec la galette en béton, enregistré pendant 68 h après 2 h d'irradiation et 23 s de refroidissement.	62
3.1	Échantillons d'UA et d'UHE sur leurs supports lors de la campagne de 2019.	65
3.2	Évolution du taux de photofission dans l'épaisseur de l'échantillon d'UA.	66
3.3	Intensité du flux de photons au niveau de la surface des échantillons, située à environ 45 cm de la cible du LINAC.	66
3.4	Échantillons d'uranium appauvri, d'uranium hautement enrichi et de plutonium sur leurs supports respectifs lors de la campagne de 2021.	68
3.5	Détecteur germanium GR3018 et son blindage neutronique.	68
3.6	Schéma du détecteur germanium GR3018.	68
3.7	Configurations de détection pour les échantillons d'uranium irradiés en 2019.	69
3.8	Courbes d'efficacité de détection pour les échantillons d'uranium irradiés en 2019.	69
3.9	Détecteur ORTEC GMX50-83-1-PL et son réservoir d'azote liquide.	70
3.10	Schéma du détecteur ORTEC GMX50-83-1-PL.	70
3.11	Configurations de détection pour les différents échantillons irradiés en 2021.	71
3.12	Courbes d'efficacité de détection pour les échantillons d'actinides irradiés en 2021.	71
3.13	Sections efficaces de photofission de ^{239}Pu et ^{240}Pu	74
3.14	Spectre gamma retardé de l'échantillon d'uranium appauvri (UA) enregistré pendant 67 h, après 2 h d'irradiation et 30 s de refroidissement.	77
3.15	Spectre gamma retardé de l'échantillon d'uranium hautement enrichi (UHE) enregistré pendant 22 h, après 2 h d'irradiation et 30 s de refroidissement.	78

3.16	Spectre gamma retardé de l'échantillon de plutonium enregistré pendant 24 h, après 2 h d'irradiation et 35 s de refroidissement.	79
3.17	Comparaison des taux de productions des produits de photofission de l' ²³⁸ U mesurés en 2021 avec les résultats de 2019 et les valeurs existantes dans la littérature.	86
3.18	Comparaison des taux de productions des produits de photofission de l' ²³⁵ U mesurés en 2021 avec les résultats de 2019 et les valeurs existantes dans la littérature.	88
3.19	Comparaison des taux de productions des produits de photofission du ²³⁹ Pu mesurés en 2021 avec les valeurs existantes dans la littérature.	90
3.20	Fonction $\delta = f(\alpha)$ pour les 6 meilleurs couples de produits de photofission discriminant ²³⁵ U et ²³⁸ U.	93
3.21	Courbes $\alpha = f(R')$ pour les couples de produits de photofission discriminants dans la configuration ²³⁵ U/ ²³⁸ U.	93
3.22	Courbes $\alpha = f(R')$ pour les couples de PF discriminants dans la configuration fissile (²³⁵ U+ ²³⁹ Pu) vs. fertile (²³⁸ U).	95
3.23	Schéma de la configuration de l'expérience comportant les échantillons de plutonium et d'UHE.	96
3.24	Fonction $\delta = f(\alpha)$ pour les 6 meilleurs couples de produits de photofission discriminant ²³⁵ U et ²³⁹ Pu.	98
3.25	Courbes $\alpha = f(R')$ pour les couples de produits de photofission discriminants dans la configuration ²³⁵ U/ ²³⁹ Pu.	99
4.1	Principe de la simulation MCNP de la distorsion du ratio de raies de gamma retardés du ¹³⁸ Cs.	104
4.2	Aperçu de la matrice en béton de 1 m de diamètre et échantillon d'uranium dans son support placé dans l'insert de la matrice.	105
4.3	Schéma de la partie expérimentale de la méthode de localisation.	105
4.4	Pics d'absorption totale à 1435,9 keV et 2639,6 keV du ¹³⁸ Cs pour l'UA représentés avec le bruit de fond actif dans les deux positions de la matrice en béton.	106
4.5	Carte de distorsion du ratio de gamma 1435,9 keV/2639,6 keV (¹³⁸ Cs) et position de l'échantillon d'UA déduite de la distorsion du ratio dans les deux positions de la matrice.	107
4.6	Sensibilité du paramètre radial r et du paramètre angulaire θ en fonction de la variabilité du ratio de raies 1435,9 keV/2639,6 keV dans les positions 1 et 2 (R ₁ et R ₂ , respectivement).	110
4.7	Sensibilité des paramètres r et θ en fonction de la variabilité de la masse volumique du béton.	110
4.8	Variations dans l'estimation de l'aire nette de la raie à 469,4 keV du ¹⁰⁵ Ru.	115
4.9	Variations dans l'estimation de l'aire nette de la raie à 676,4 keV du ¹⁰⁵ Ru.	116
4.10	Comparaison de la raie la plus intense du spectre émise par un produit de photofission (1383,9 keV du ⁹² Sr) avec la raie du ⁵⁷ Ni produit par activation du ⁵⁸ Ni pour 2 h d'irradiation, 35 s de refroidissement et 22,1 h de comptage.	117
4.11	Distribution en profondeur du taux de photofission et des rayonnements gamma retardés parvenant à sortir de la sphère et atteignant le détecteur aux énergies de 641 keV et 3927 keV dans la configuration 3.	119
4.12	Écart de l'efficacité de détection par rapport à la configuration 2 en fonction de l'énergie du rayonnement gamma.	120
4.13	Masse d' ²³⁸ U estimée en fonction de l'énergie du rayonnement gamma retardé étudié pour les trois configurations.	122
5.1	Dispositif expérimental utilisé pour l'estimation des limites de détection en uranium dans une matrice en béton.	125
5.2	Schéma de calcul permettant de déterminer le nombre de rayonnements gamma retardés détectés via le taux de photofission dans les échantillons et l'efficacité de détection des rayonnements gamma retardés.	127

5.3	Évolution du nombre de rayonnements gamma détectés en fonction de la profondeur dans la matrice en béton et ajustement des données avec une fonction exponentielle décroissante.	129
5.4	Illustration des concepts de seuil de décision (SD) et limite de détection (LD) pour des distributions de résultats de mesure suivant une loi normale.	130
5.5	Évolution de la limite de détection en fonction de la profondeur pour la matrice en béton.	132
5.6	Dimensions externes d'un colis 870 L.	133
5.7	Schéma de la structure interne d'un colis 870 L.	133
5.8	Raie gamma à 1383,9 keV émise par le ^{92}Sr	134
5.9	Raie gamma à 3927,5 keV émise par le ^{84}Br	134
5.10	Limites de détection dans le colis 870 L pour la raie à 3927,5 keV du ^{84}Br pour l' ^{238}U pour une densité du bloc déchets de $1,45 \text{ g.cm}^{-3}$	136
5.11	Limites de détection dans le colis 870 L pour la raie à 3927,5 keV du ^{84}Br pour l' ^{235}U pour une densité du bloc déchets de $1,45 \text{ g.cm}^{-3}$	138
5.12	Part de fissions neutroniques en fonction de la profondeur dans le colis 870 L pour les deux types d'échantillons.	139
5.13	Flux neutronique total dans le colis de déchets 870 L pour différentes configurations.	140
5.14	Flux neutronique de basse énergie ($E < 1 \text{ eV}$) dans le colis de déchets 870 L pour différentes configurations.	140
5.15	Configuration actuelle du système de détection et de son blindage.	142
5.16	Configuration future du système de détection et de son blindage.	142
5.17	Spectre de rayonnements gamma retardés de haute énergie enregistré avec l'échantillon d'UA dans la matrice en béton et bruit de fond actif correspondant.	143
5.18	Schéma du concept de la mesure en post-irradiation.	144
5.19	Schéma du concept de la mesure en mode inter-impulsions (un seul détecteur est représenté avec son collimateur, mais plusieurs ensembles sont envisageables).	145
G.1	Fonction $\delta = f(\alpha)$ pour les 6 meilleurs couples de produits de photofission discriminant ^{238}U et ^{239}Pu	169
G.2	Courbes $\alpha = f(R')$ pour les couples de PF discriminants dans la configuration $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$	169
G.3	Courbes $\alpha = f(R')$ pour les faibles ratios R' dans la configuration $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$	170
H.1	Raie à 358,0 keV du ^{104}Tc	176
H.2	Raie à 893,1 keV du ^{104}Tc	176
H.3	Raie à 1596,7 keV du ^{104}Tc	176
H.4	Raie à 1157,4 keV du ^{104}Tc	177
H.5	Raie à 2123,8 keV du ^{104}Tc	177
H.6	Raie à 535,1 keV du ^{104}Tc	177
H.7	Raie à 402,6 keV du ^{87}Kr	178
H.8	Raies à 469,4 keV du ^{105}Ru et à 482,4 keV du ^{128}Sn	178
H.9	Raie à 676,4 keV du ^{105}Ru	178
I.1	Raies à 881,6 keV du ^{84}Br et à 884,1 keV de l' ^{134}I	181

Liste des tableaux

1.1	Caractéristiques des différentes catégories de déchets selon l'activité et la période. . .	4
1.2	Description et origine des catégories de déchets.	4
1.3	Seuil de photofission pour les principaux actinides.	12
1.4	Modes d'interrogation de la matière en IPA et caractéristiques associées.	16
1.5	Types de particules détectées en IPA et caractéristiques associées.	17
1.6	Types de colis à caractériser issus de l'INB 56.	18
1.7	Sections efficaces de photofission de l' ^{235}U , l' ^{238}U et le ^{232}Th pour différentes énergies, issues de la base de données ENDF B-V.III.0.	21
1.8	Ratio des signaux gamma retardés de haute énergie et neutrons retardés en fonction de la matière irradiée.	22
1.9	Ratios avec pour dénominateur la raie à 1436 keV du ^{138}Cs	24
1.10	Exemples de ratios utilisés pour la différenciation.	25
1.11	Énergie seuil des réactions (γ, n) et $(\gamma, 2n)$ pour quelques actinides.	28
1.12	Exemples de rendements de production cumulatifs (en %) pour les produits de photofission de l' ^{238}U issus de la littérature.	29
2.1	Énergies seuils des réactions de production de photoneutrons pour le cadmium, le tungstène et le plomb.	33
2.2	Matériaux irradiés pour la caractérisation des faisceaux de photons et neutrons pendant la campagne expérimentale de 2019.	36
2.3	Configurations expérimentales d'irradiation et de mesure des matériaux utilisés pour la caractérisation des faisceaux de photons et de neutrons lors de la campagne de 2019.	37
2.4	Matériaux irradiés pour la caractérisation des faisceaux de photons et neutrons pendant la campagne expérimentale de 2021.	38
2.5	Configurations expérimentales d'irradiation et de mesure des matériaux utilisés pour la caractérisation des faisceaux de photons et de neutrons lors de la campagne de 2021.	39
2.6	Produits d'activation d'intérêt formés et raies gamma observées.	40
2.7	Raies gamma d'activation par réaction (γ, n) pour la campagne de 2019.	47
2.8	Facteur de mérite pour les distributions en énergie testées pour la campagne de 2019, avec E_{max} et α en MeV.	48
2.9	Flux de photons expérimentaux calculés pour les quatre matériaux et la distribution en énergie des électrons la plus probable lors de la campagne de 2019.	48
2.10	Raies gamma d'activation par réaction (γ, n) pour la campagne de 2021.	51
2.11	Facteur de mérite pour les distributions en énergie testées pour la campagne de 2021, avec E_{max} et α en MeV.	51
2.12	Flux de photons calculés pour les quatre matériaux et la distribution en énergie des électrons la plus probable lors de la campagne de 2021.	52
2.13	Comparaison expérience/simulation pour l'aire nette des raies gamma émises par le ^{116m}In pour la campagne de 2019.	56
2.14	Caractéristiques d'irradiation et de comptage pour la mesure du bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE vide.	57
2.15	Identification des raies de produits d'activation provenant du système de détection lors de la campagne de 2021 et comparaison avec la campagne de 2019.	60
2.16	Identification des raies de produits d'activation provenant des éléments de structure ou du bruit de fond naturel de la cellule CINPHONIE lors de la campagne de 2021 et comparaison avec la campagne de 2019.	61

2.17	Produits d'activation observés dans le bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE vide et caractéristiques associées.	62
2.18	Identification des raies de produits d'activation provenant de la galette en béton. . .	63
2.19	Produits d'activation supplémentaires observés dans le bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE avec la galette en béton et caractéristiques associées.	63
3.1	Description des échantillons d'actinides utilisés lors de la campagne expérimentale de 2019.	66
3.2	Description des échantillons d'actinides utilisés lors de la campagne expérimentale de 2019.	67
3.3	Caractéristiques de la phase de détection pour les expériences de 2019.	70
3.4	Caractéristiques de la phase de détection pour les expériences de 2021.	72
3.5	Origine des neutrons et différentes contributions aux fissions lors des expériences de 2019.	73
3.6	Différentes contributions aux fissions dans les échantillons de la campagne expérimentale de 2021.	74
3.7	Taux de production cumulatifs pour la photofission de ^{238}U mesurés lors de la campagne de 2019.	81
3.8	Taux de production cumulatifs pour la photofission de ^{235}U mesurés lors de la campagne de 2019.	82
3.9	Taux de production cumulatifs pour la photofission de ^{238}U mesurés lors de la campagne de 2021.	83
3.10	Taux de production cumulatifs pour la photofission de ^{235}U mesurés lors de la campagne de 2021.	83
3.11	Taux de production cumulatifs pour la photofission du ^{239}Pu mesurés lors de la campagne de 2021.	84
3.12	Rendements cumulatifs des produits de photofission de ^{238}U et comparaison avec les données publiées.	85
3.13	Rendements cumulatifs des produits de photofission de ^{235}U et comparaison avec les données publiées.	87
3.14	Rendements cumulatifs des produits de photofission du ^{239}Pu et comparaison avec les données publiées.	89
3.15	Paramètres temporels de refroidissement et de mesure pour les produits de photofission de l'UA observés pour la différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	94
3.16	Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ pour l'échantillon d'UA.	94
3.17	Paramètres temporels de refroidissement et de mesure pour les produits de photofission de l'UHE observés pour la différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	94
3.18	Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ pour l'échantillon d'UHE.	95
3.19	Paramètres temporels utilisés pour l'exploitation des spectres de rayonnements gamma retardés pour la différenciation fissile/fertile sur les échantillons de plutonium et d'UHE.	96
3.20	Résultats de la méthode de différenciation fissile/fertile pour les échantillons d'UHE et de plutonium.	97
3.21	Paramètres temporels utilisés pour l'exploitation des spectres de rayonnements gamma retardés pour la différenciation fissile/fertile sur l'échantillon d'UA.	97
3.22	Résultats de la méthode de différenciation fissile/fertile pour l'échantillon d'UA.	97
3.23	Paramètres temporels de refroidissement et de mesure pour les produits de photofission du plutonium observés pour la différenciation $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$	99
3.24	Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ pour l'échantillon de plutonium.	99
3.25	Paramètres temporels de refroidissement et de mesure pour les produits de photofission de l'UHE observés pour la différenciation $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$	100
3.26	Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ pour l'échantillon d'UHE.	100
4.1	Différence des coefficients d'atténuation massique entre 1435,9 keV et 2639,6 keV pour plusieurs matériaux.	104

4.2	Durées de comptage pour les expériences de localisation.	106
4.3	Aires nettes des pics d'absorption totale du ^{138}Cs pour les échantillons d'UA et d'UHE.	106
4.4	Résultats de localisation issus de l'analyse de la distorsion du ratio de raies de 1435,9 keV et 2639,6 keV du ^{138}Cs	107
4.5	Correction des ratios de raies gamma pour l'échantillon d'UA dans la matrice en béton, derrière 8 cm de béton et 4 mm d'acier.	109
4.6	Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ pour l'échantillon d'UA dans la matrice en béton.	112
4.7	Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ pour les échantillons d'UA et d'UHE dans la matrice en béton.	113
4.8	Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ pour l'échantillon d'UHE dans la matrice en béton.	114
4.9	Caractéristiques des rayonnements gamma retardés étudiés pour la quantification ainsi que de leur produit de photofission émetteur.	118
4.10	Taux de photofission simulé avec MCNP dans les différentes configurations.	119
4.11	Efficacités de détection simulées avec MCNP dans les différentes configurations.	120
4.12	Masse d' ^{238}U estimée pour chaque rayonnement gamma retardé dans les trois configurations étudiées.	121
4.13	Comparaison des effets d'auto-atténuation pour une masse d' ^{238}U voisine de 200 g (échantillon d'UA réel, valeur précise non communicable) ou égale à 10 g (échantillon fictif modélisé).	122
5.1	Configurations temporelles et géométriques pour le calcul des limites de détection dans la matrice en béton.	126
5.2	Résultats de simulation pour les échantillons d'uranium placés dans la matrice en béton.	128
5.3	Estimation du nombre de rayonnements gamma retardés de 1383,9 keV détectés en fonction de la profondeur de l'échantillon dans la matrice en béton.	128
5.4	Comparaison entre le nombre de rayonnements gamma détectés expérimentalement et celui estimé par simulation MCNP pour les échantillons d'uranium situés à 7,2 cm de profondeur.	129
5.5	Bruit de fond actif et limite de détection associée pour la raie à 1383,9 keV et la matrice en béton.	131
5.6	Limites de détection (en g) en fonction de la profondeur dans la matrice en béton.	131
5.7	Informations issues de la caractérisation destructive de 10 colis 870 L dans la cellule CADECOL.	132
5.8	Composition massique choisie pour le bloc déchets du modèle de colis 870 L.	133
5.9	Raies gamma étudiées et caractéristiques associées pour l'évaluation des limites de détection dans un colis 870 L.	134
5.10	Données nécessaires à l'évaluation des limites de détection pour chaque raie de rayonnement gamma retardé.	135
5.11	Taux de photofission en fonction de la profondeur dans une cellule mince d'uranium située dans la matrice de colis 870 L.	135
5.12	Limites de détection en ^{238}U en fonction de la profondeur dans le colis 870 L pour une masse volumique du bloc déchets de $1,45 \text{ g.cm}^{-3}$	136
5.13	Limites de détection en ^{235}U en fonction de la profondeur dans le colis 870 L pour une masse volumique du bloc déchets de $1,45 \text{ g.cm}^{-3}$	137
5.14	Exemples de produits de fission dont la mesure des rayonnements gamma retardés d'énergie supérieure à 3,4 MeV peut être envisagée en mode post-irradiation.	144
5.15	Exemples de produits de fission dont la mesure des rayonnements gamma retardés d'énergie supérieure à 3,4 MeV peut être envisagée en mode inter-impulsions.	145
G.1	Paramètres temporels de refroidissement et de mesure pour les produits de photofission du plutonium observés pour la différenciation $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$	170
G.2	Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ pour l'échantillon de plutonium.	171

G.3	Paramètres temporels de refroidissement et de mesure pour les produits de photofission de l'UA observés pour la différenciation $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$	171
G.4	Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ pour l'échantillon d'UA.	171
H.1	Surfaces nettes des pics de rayonnements gamma retardés étudiés pour la différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ de l'échantillon d'UA dans la matrice en béton.	173
H.2	Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ pour l'échantillon d'UA derrière 8 cm de béton.	174
I.1	Surfaces nettes des pics de rayonnements gamma retardés étudiés pour la différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ des échantillons d'UA et d'UHE dans la matrice en béton.	179
I.2	Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ pour les échantillons d'UA et d'UHE derrière 8 cm de béton.	180
J.1	Surfaces nettes des pics de rayonnements gamma retardés étudiés pour la différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ de l'échantillon d'UHE dans la matrice en béton.	183
J.2	Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ pour l'échantillon d'UHE derrière 7 cm de béton.	184

Introduction générale

La caractérisation et la traçabilité des déchets radioactifs sont un enjeu majeur pour l'industrie nucléaire. Leur gestion est essentielle que ce soit d'un point de vue éthique ou sociétal, mais également pour des questions de sûreté. Une gestion sûre de ces déchets, permettant de protéger les générations actuelles et futures, nécessite la connaissance la plus précise possible de leur contenu (masse fissile, activité alpha, produits chimiques, etc.). Concernant leur contenu radiologique, la masse fissile (par exemple l' ^{235}U et le ^{239}Pu) est un paramètre nécessaire pour les analyses de sûreté-criticité dans le cadre des transports et entreposages. D'autre part, une connaissance précise de leur activité alpha à long terme, due notamment aux isotopes du plutonium, permet de les envoyer vers le mode de stockage définitif le plus approprié, ce qui implique potentiellement des économies conséquentes. Puisque les colis de déchets radioactifs existent sous des formes multiples et possèdent des contenus très divers, leur caractérisation met en jeu une grande variété de techniques de mesure.

Les méthodes de caractérisation peuvent être regroupées en deux familles distinctes, à savoir les méthodes destructives et les méthodes non-destructives. Les premières nécessitent le prélèvement et l'analyse d'échantillons dans le colis. Leur mise en œuvre est souvent limitée, d'une part pour une question de représentativité de l'échantillon puisque les actinides peuvent être répartis de façon hétérogène, et d'autre part car elles impliquent la production de déchets secondaires et l'exposition radiologique des opérateurs. Les méthodes non-destructives sont donc privilégiées pour la caractérisation radiologique des colis de déchets. Celles-ci sont divisées en deux catégories : les méthodes passives et les méthodes actives. Les premières exploitent les rayonnements émis spontanément par les radioéléments présents dans le colis, on y retrouve principalement la spectrométrie gamma et le comptage neutronique. Cependant, ces rayonnements peuvent être faiblement énergétiques et donc facilement absorbés dans le colis, ou peu intenses et masqués par d'autres émetteurs. Des méthodes de caractérisation non-destructive actives sont alors mises en place. Elles consistent à utiliser une source de rayonnement externe afin d'induire des fissions dans le colis. Ces dernières peuvent être provoquées via l'irradiation par un faisceau de neutrons (Interrogation Neutronique Active ou INA) ou par un faisceau de photons (Interrogation Photonique Active ou IPA). Les particules émises lors de la fission ou par les produits de fission sont ensuite détectées afin d'obtenir des informations sur la nature et la quantité d'actinides présents à l'intérieur du colis.

Les colis bétonnés de 870 L produits par le CEA et entreposés au sein de l'INB 56 du centre de Cadarache sont des colis historiques qui ne peuvent pas être caractérisés efficacement par spectrométrie gamma ou mesures neutroniques passives et actives en raison d'une sensibilité insuffisante et d'incertitudes très pénalisantes liées à une forte atténuation des neutrons et des rayonnements gamma dans les déchets ou le béton. Or, une quantification précise de la matière nucléaire dans ces colis serait un atout majeur pour les orienter vers la filière de gestion la plus appropriée (par exemple l'installation CEDRA, plus récente, et/ou un site de stockage de l'ANDRA). Par conséquent, l'IPA avec un faisceau de photons de *Bremsstrahlung* est étudiée pour localiser et quantifier la matière fissile dans ces fûts, et plus globalement dans tous les colis de déchets bétonnés volumineux.

La photofission devient possible pour les actinides lorsqu'ils sont interrogés avec des photons d'énergie supérieure à 6 MeV, le seuil de réaction étant similaire pour les différents isotopes de l'uranium et du plutonium. Contrairement à l'interrogation neutronique avec des neutrons thermiques, la méthode ne permet pas d'estimer directement la masse de matière fissile puisque tous les actinides ont une section efficace de photofission du même ordre de grandeur (quelques fractions de barn au maximum, contre plusieurs centaines de barns en fission neutronique thermique pour les isotopes fissiles). Il faut donc recourir à une méthode de différenciation pour évaluer les proportions des actinides d'intérêt. Pour ce faire, les différences dans les taux de production des produits de photofission selon l'actinide peuvent être exploitées (la bosse liée au fragment le plus léger de la courbe en « dos de chameau » de répartition des produits de photofission diffère nettement d'un isotope à l'autre) via la mesure de

ratios de pics de gamma retardés avec un détecteur à haute résolution de type germanium de haute pureté. La mise en œuvre de l'IPA avec des colis de 870 L nécessite plusieurs étapes complémentaires. Tout d'abord, la caractérisation du faisceau de photons de *Bremsstrahlung* interrogateur est nécessaire, en termes de distribution énergétique du flux photonique. Elle permet la mesure en absolu des rendements des produits de photofission pour les différents actinides, qui sont des données rares dans la littérature. La connaissance de ces taux de production est primordiale pour la mise en place d'une méthode de différenciation au sein de mélanges d'actinides. La connaissance du faisceau interrogateur permet en outre de déterminer le taux de photofission qu'il induit au sein d'un colis de déchets, qui est une donnée cruciale pour la quantification de la masse de matière nucléaire. De façon complémentaire, le développement d'une technique de localisation de la matière nucléaire s'avère tout aussi indispensable pour la correction des effets de matrice, à la fois pour la différenciation des actinides et pour la quantification de la matière nucléaire.

Toutes ces étapes sont développées au cours de cette thèse. Le premier chapitre situe l'Interrogation Photonique Active au sein des différentes méthodes de mesure nucléaire non-destructives. Tout d'abord, les méthodes non-destructives pour la caractérisation des colis de déchets radioactifs sont exposées, avec leurs domaines d'application ainsi que leurs limitations pour comprendre l'intérêt de l'IPA associée à la mesure de rayonnements gamma retardés de photofission pour la caractérisation de colis de déchets volumineux, bétonnés et hétérogènes. En ce sens, les travaux déjà effectués dans ce domaine sont passés en revue et les principales limitations sont identifiées, ce qui permet de dresser le contexte et les enjeux de cette thèse.

Le second chapitre détaille une méthode de caractérisation du faisceau de l'accélérateur linéaire d'électrons (LINAC) Saturne situé dans la cellule d'irradiation CINPHONIE de l'institut IRESNE, au CEA de Cadarache. Des mesures d'activation photonique et neutronique de matériaux de référence ont été effectuées afin de caractériser le faisceau de photons de *Bremsstrahlung* et le flux de photoneutrons produits par l'accélérateur. Ces mesures sont couplées à des simulations Monte-Carlo réalisées avec le code MCNP6.1 pour déterminer notamment la distribution en énergie des électrons du LINAC et le flux de photons de *Bremsstrahlung*, qui sont des données nécessaires pour faire des mesures quantitatives par la suite. Ce chapitre s'attache également à une description du bruit de fond actif dans la cellule CINPHONIE afin d'identifier ses principales sources.

Le troisième chapitre propose la mesure de nouvelles données expérimentales concernant les taux de production des produits de photofission de ^{235}U , ^{238}U et du ^{239}Pu via l'irradiation d'échantillons d'uranium et de plutonium avec un faisceau de photons de *Bremsstrahlung*. Une comparaison de ces nouvelles données est effectuée avec celles publiées précédemment dans la littérature. À partir des mesures des taux de production cumulatifs, les couples de produits de photofission les plus efficaces pour différencier les actinides sont ensuite identifiés pour différents mélanges d'isotopes ^{235}U , ^{238}U et ^{239}Pu . La méthode de différenciation exposée est finalement testée sur des échantillons nus d'actinides.

Le quatrième chapitre décrit le développement d'une technique de localisation d'un point chaud au sein d'une matrice en béton par l'analyse de spectres de rayonnements gamma retardés. Elle est basée à la fois sur des données expérimentales (atténuation différentielle des rayonnements gamma retardés émis par le ^{138}Cs) et des simulations MCNP. La localisation de la matière photofissile est une étape essentielle pour corriger les effets de matrice, non seulement pour la quantification de la matière nucléaire mais aussi pour la discrimination des actinides, qui est affectée par l'atténuation différentielle des rayonnements gamma retardés. Dans ce cadre, la technique de différenciation évoquée dans le troisième chapitre est testée sur des mélanges d'actinides positionnés au sein d'une matrice en béton utilisée comme colis maquette. L'influence des effets d'auto-atténuation au sein même des actinides sur la quantification de la matière nucléaire est également étudiée par simulation.

Enfin, le cinquième chapitre s'attache à évaluer les performances de la méthode de caractérisation de colis de déchets par IPA. Dans un premier temps, les limites de détection sont calculées pour la matrice en béton utilisée lors des expériences dans la cellule CINPHONIE. Une comparaison entre les résultats expérimentaux et ceux obtenus par simulation nous permet dans un second temps d'évaluer les performances de la méthode de caractérisation par IPA sur un colis 870 L, à partir de sa modélisation MCNP. L'estimation des limites de détection sur ce colis en fonction de la localisation de la matière fissile permet de dégager les limitations actuelles et les principaux axes d'amélioration de la méthode.

Chapitre 1

L'Interrogation Photonique Active (IPA) et la caractérisation non-destructive des colis de déchets radioactifs

1.1 Les méthodes non-destructives pour la caractérisation de colis de déchets radioactifs

La caractérisation des colis de déchets radioactifs est essentielle pour leur transport, leur entreposage ou leur stockage, dans une optique de sûreté. La composition des isotopes radioactifs en présence ainsi que leur activité associée doivent être connues afin de vérifier le respect de la législation nationale. Si la composition des colis de déchets radioactifs produits actuellement est bien connue et tracée, il n'en est pas de même pour certains colis produits aux débuts du développement de l'industrie nucléaire. Pour combler la méconnaissance de certaines informations cruciales comme la masse fissile ou l'activité alpha, il est nécessaire de mettre en œuvre des méthodes de caractérisation [1]. Il est possible d'obtenir des informations sur l'intérieur d'un colis de déchets en réalisant des mesures destructives, c'est-à-dire en prélevant des échantillons et en faisant des analyses physiques, chimiques et radiologiques sur ces derniers. Cependant, ces analyses demandent beaucoup de temps et de précautions et n'apportent souvent qu'une réponse partielle à la caractérisation. En effet, dans le cas de déchets hétérogènes, l'analyse d'une petite partie du colis peut ne pas être représentative de l'ensemble et causer une mauvaise estimation des grandeurs d'intérêt. D'un point de vue méthodologique et financier, il est donc raisonnable de se tourner vers des méthodes de caractérisation globale et non-destructive, complétées ponctuellement seulement par des méthodes destructives. C'est pourquoi plusieurs méthodes de caractérisation ont été mises au point, permettant l'accès à des caractéristiques physiques (densité, volume, position des déchets dans un colis, hétérogénéités, présence d'écrans internes), chimiques (composition élémentaire, présence de substances réactives) et radiologiques (débit de dose, activités α et β , inventaire radiologique et quantité de matière nucléaire) [2]. Dans un premier temps, une présentation de l'origine des déchets radioactifs et de quelques types de colis est effectuée. Dans un second temps, les méthodes de caractérisation non-destructive sont passées en revue, avec les principales techniques passives puis les méthodes actives. Enfin, nous focalisons notre propos sur l'Interrogation Photonique Active, objet de cette thèse.

1.1.1 Colis de déchets radioactifs

Les déchets radioactifs existent sous des formes multiples. Cette dénomination regroupe différents contaminants dans des formes de colis très diverses. En France, leur gestion relève de l'article L542 du code de l'environnement [3], et ils sont classés selon deux critères : leur activité et leur période. Un tableau de classification issu de l'Inventaire national des matières et déchets radioactifs [4] réalisé par l'ANDRA [5] est disponible sur la Figure 1.1. Le détail de chaque catégorie en termes d'activité ou de période est rappelé dans le Tableau 1.1. La description et l'origine des différents types de déchets sont également données dans le Tableau 1.2.

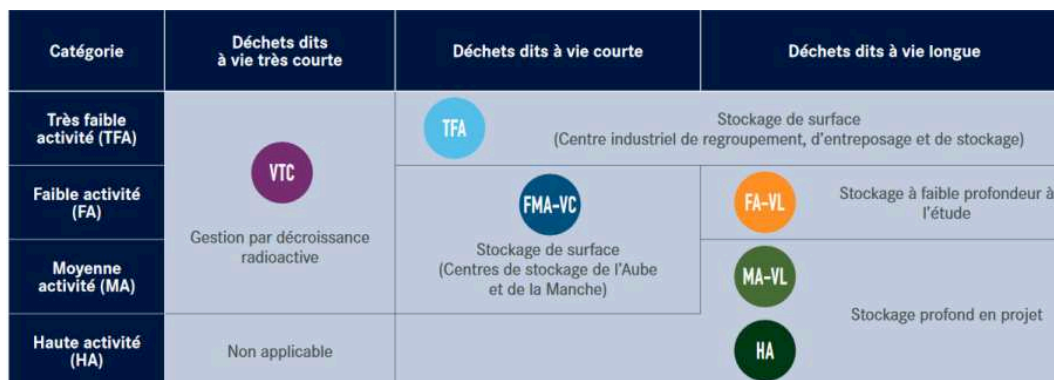


FIGURE 1.1 – Classification des déchets radioactifs et filières de gestion associées [4].

TABLEAU 1.1 – Caractéristiques des différentes catégories de déchets selon l'activité et la période [4].

Catégorie d'activité	Activité	Catégorie de période	Période
Très Faible Activité (TFA)	$< 100 \text{ Bq.g}^{-1}$	Vie Très Courte (VTC)	< 100 jours
Faible Activité (FA)	$100 \text{ à } 10^6 \text{ Bq.g}^{-1}$	Vie Courte (VC)	≤ 31 ans
Moyenne Activité (MA)	$10^6 \text{ à } 10^9 \text{ Bq.g}^{-1}$	Vie Longue (VL)	> 31 ans
Haute Activité (HA)	$> 10^9 \text{ Bq.g}^{-1}$		

TABLEAU 1.2 – Description et origine des catégories de déchets [4].

Catégorie	Description	Origine
HA	Produits de fission/d'activation Actinides mineurs	Retraitement du combustible utilisé Recherche
MA-VL	Structures d'assemblages combustibles Boues de traitement d'effluents Déchets technologiques	Retraitement du combustible utilisé Recherche
FA-VL	Déchets radifères Déchets graphite des centrales UNGG Déchets de réacteurs expérimentaux	Assainissement et démantèlement Déchets de procédés d'enrichissement
FMA-VC	Déchets solides (vêtements, filtres...) Boues de traitement d'effluents	Exploitation, maintenance et démantèlement de centres industriels ou de recherche nucléaire
TFA	Déchets inertes (gravats, ferrailles, béton, terre) Déchets métalliques ou plastiques	Exploitation, maintenance et démantèlement de centres industriels ou de recherche nucléaire
VTC	Radionucléides pour des besoins de diagnostic ou thérapeutiques	Médecine Recherche

Chaque filière de production de colis de déchets radioactifs est associée à une méthode spécifique de caractérisation, généralement basée sur des prises d'échantillons en ligne suivies d'analyses radiochimiques pour les déchets homogènes, ou des mesures non destructives pour les déchets hétérogènes. Les examens destructifs de colis de déchets, que ce soit sur les propriétés physico-chimiques de l'enveloppe, du liant et des déchets, ou sur son contenu et sa composition radiologique [2], ne sont réalisés que rarement comme lors des super-contrôles [6] (examens destinés à vérifier la conformité des colis envoyés au centre de stockage). En effet, la réalisation d'un carottage ou d'une découpe de colis génère des déchets secondaires, porte atteinte à son intégrité physique et implique donc un reconditionnement, et expose les opérateurs à des risques radiologiques. Les techniques non-destructives de mesures nucléaires n'altèrent pas l'état physique du colis et permettent une mesure globale et rapide de ce dernier. Dans

certains cas, le rayonnement émis est propre à l'isotope d'intérêt et son intensité peut être directement reliée à la quantité recherchée (activité ou masse de matière nucléaire) [7]. Les paragraphes suivants passent en revue les méthodes de caractérisation non-destructive passives et actives.

1.1.2 Méthodes de caractérisation non-destructive passives

Les méthodes passives sont basées sur l'analyse de rayonnements émis spontanément par les matières à caractériser, lors de leur décroissance radioactive. Elles nécessitent seulement l'utilisation d'un dispositif de comptage approprié, et sont par conséquent simples et peu coûteuses à mettre en œuvre.

1.1.2.1 Spectrométrie gamma

La méthode passive la plus répandue est la spectrométrie gamma, du fait de sa simplicité de mise en œuvre, de la richesse d'information qu'elle procure et de son coût peu élevé. Certains radionucléides émettent des rayonnements gamma caractéristiques, du point de vue de leur énergie et de leur intensité, ce qui permet de les identifier et les quantifier. La spectrométrie gamma passive permet donc de déterminer la composition isotopique des matériaux nucléaires. Cette technique se base sur la mesure des photons avec un détecteur délivrant un signal proportionnel à leur énergie, et classe les signaux dans un histogramme, comme celui montré sur la Figure 1.2. Deux types de détecteurs sont utilisés à cette fin [2] :

- Des scintillateurs de type NaI(Tl), BGO, LaBr₃(Ce), qui possèdent une résolution en énergie faible ou moyenne, mais qui sont rapides. Certains peuvent être fabriqués dans des volumes conséquents, notamment les NaI(Tl), améliorant l'efficacité de détection.
- Des semi-conducteurs utilisés à température ambiante, comme les CdTe et CdZnTe qui possèdent une meilleure résolution que les scintillateurs, ou des semi-conducteurs refroidis qui présentent encore une meilleure résolution. Pour ces derniers, le germanium haute pureté (Ge HP) est la référence en la matière : il possède une excellente résolution (environ 2 keV à 1332 keV), ce qui permet d'analyser des spectres complexes en séparant les pics proches en énergie issus de différents radionucléides. Cependant il nécessite un refroidissement à l'azote liquide ou avec un cryogénérateur électrique, et son coût est relativement élevé, notamment par rapport aux scintillateurs comme le NaI.

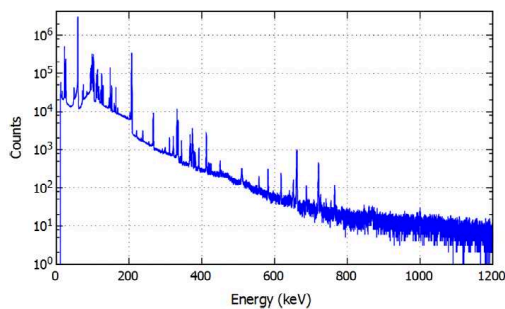


FIGURE 1.2 – Spectre gamma obtenu avec un détecteur Ge HP [2].



FIGURE 1.3 – Station de spectrométrie gamma pour des colis de déchets au CEA Cadarache [2].

Plusieurs types de mesures peuvent être envisagés pour l'examen d'un colis de déchets [2] :

- La mesure globale est utilisable sur une grande variété de colis (du conteneur en polyéthylène de quelques litres aux fûts en métal de 100 L à 1 m³, et particulièrement pour cette thèse les colis en béton de grand volume). Elle permet d'accéder à l'activité, à la composition isotopique et à la localisation des radioéléments. Ce type de mesure est effectué à l'aide d'une station de spectrométrie gamma, comme celle montrée sur la Figure 1.3. La limitation majeure de cette technique est que les rayonnements gamma sont fortement atténués dans les matériaux denses. Par exemple, des gamma d'énergie inférieure à 2 MeV, émis par des radionucléides communs d'intérêt, sont trop atténués après avoir traversé quelques dizaines de centimètres de béton. Il faut donc effectuer une correction de l'auto-absorption en fonction de la taille et de la densité des colis [8]. Des sources de transmission, comme l'isotope ¹⁵²Eu qui présente de multiples raies,

peuvent être montées à l'opposé du détecteur afin d'évaluer l'atténuation des rayonnements gamma en fonction de leur énergie, pour reconstruire au mieux l'activité d'un radionucléide. Un exemple d'utilisation de mesure globale est disponible dans la publication de Ridikas *et al.* [9], pour l'inspection de colis en béton issus du démantèlement d'un accélérateur Saturne à Saclay (CEA). Elle montre que l'utilisation combinée de la spectrométrie gamma et de la simulation Monte-Carlo est essentielle, pour étudier par exemple les différents cas possibles de distribution de matière et les inhomogénéités en densité. Cela permet d'estimer l'activité d'un traceur tel que ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{60}Co , en donnant un cas enveloppe avec une incertitude d'un facteur 2 ou 3.

- Les mesures segmentées et la tomographie d'émission qui consistent à focaliser les mesures avec un collimateur et scanner le colis avec différents mouvements de translation, rotation et élévation :
 - Le gamma scanning permet de réaliser la mesure pour toute une tranche. Krings *et al.* [10] proposent une méthode pour améliorer l'estimation de l'activité d'isotopes émetteurs gamma concentrés spatialement (point chaud, source point) dans des colis de déchets hétérogènes. Elle se base sur une rotation du colis pendant le scanning vertical, le nombre de coups dépendant de la position angulaire. Cependant, la présence d'écrans et structures internes contribue à une forte sous-estimation de l'activité, en particulier pour des radionucléides émettant des photons gamma de faible énergie.
 - La tomographie d'émission combine un balayage horizontal et des acquisitions angulaires. Le but est de reconstruire la distribution spatiale de l'activité dans la section observée. L'analyse de plusieurs sections permet une reconstruction 3D de l'activité. La présence de zones vides, ou de haute densité a un effet très important sur l'image reconstruite, dû à l'atténuation et à la diffusion. La correction pour les effets de diffusion est primordiale, surtout dans le cas où une source avec plusieurs énergies d'émission est présente, au risque de voir une dégradation de la qualité de l'image [11].

Thanh *et al.* [12] montrent que la combinaison de ces deux méthodes permet de localiser la source verticalement dans un premier temps, par scanning, puis horizontalement par reconstruction tomographique.

La spectrométrie gamma est une méthode facile à mettre en œuvre et bien adaptée pour des colis de faible densité, mais elle n'est pas appropriée pour des colis très denses, notamment si les radio-isotopes à caractériser émettent spontanément des rayonnements gamma à basse énergie (comme l'uranium et le plutonium). Il arrive également que l'émission gamma de ces radionucléides d'intérêt soit masquée par celle d'émetteurs plus intenses, comme les produits de fission ou d'activation [2]. Il faut alors recourir à des mesures complémentaires utilisant des neutrons.

1.1.2.2 Comptage neutronique passif

Contrairement aux rayonnements gamma, les neutrons peuvent traverser de grands colis de déchets contenant des matériaux denses et de numéro atomique élevé [7]. Les mesures neutroniques passives fournissent des informations sur la quantité d'actinides présente dans les déchets radioactifs. Elles sont utilisées majoritairement pour estimer la quantité de plutonium et détectent les neutrons émis spontanément lors de la désintégration des noyaux lourds grâce à deux phénomènes [2] :

- La fission spontanée accompagnée de l'émission de 2 à 4 neutrons issue majoritairement du ^{240}Pu et du ^{244}Cm dans les déchets radioactifs.
- Les réactions (α, n) produisant un seul neutron à la suite de l'interaction entre une particule α , issue de la désintégration du ^{238}Pu ou du ^{241}Am par exemple, avec un élément léger du milieu comme Be, B, C, F.

L'avantage de cette méthode est qu'elle est peu sensible à la densité du matériau entourant les matériaux nucléaires comparé à la spectrométrie gamma. Cependant, elle est très sensible à la présence d'éléments légers comme l'hydrogène qui ralentit et absorbe les neutrons.

Le comptage total des neutrons est l'application la plus simple de cette méthode. Il peut être réalisé avec des détecteurs situés près de l'objet à caractériser (détecteurs à ^3He , compteurs proportionnels au bore, chambres à fission, scintillateurs liquide ou plastique, etc.). Malgré tout, dans le cas des déchets radioactifs, le comptage total des neutrons est très sensible à la forme chimique du contaminant via la composante issue des réactions (α, n) [7, 13]. Selon l'élément léger impliqué, la production de neutrons

peut varier d'un facteur 1000 [2]. C'est pourquoi, pour pouvoir caractériser les actinides présents dans des déchets radioactifs de façon indépendante de leur forme chimique, il est nécessaire de discriminer les signaux issus des réactions (α, n) de ceux issus des fissions spontanées en réalisant des mesures de coïncidences. Puisque la réaction (α, n) ne libère qu'un seul neutron, alors la détection en coïncidence de 2 neutrons ou plus ne peut être liée qu'à la fission spontanée d'un actinide, hormis les coïncidences accidentelles (principalement dues aux neutrons de réactions (α, n)) qu'il est possible de soustraire grâce à la méthode des registres à décalage mise en œuvre en comptage des coïncidences neutroniques [7].

Les mesures neutroniques passives ne permettent pas d'identifier les radionucléides émetteurs, puisque les neutrons sont émis selon un spectre en énergie continu et que de surcroît leur détection par les compteurs proportionnels à ^3He , les plus utilisés, nécessite leur thermalisation préalable. La connaissance de la composition isotopique du contaminant ou l'utilisation d'un spectre-type est donc requise pour interpréter quantitativement les résultats de mesure [2]. Il est également important de mentionner que la présence de curium peut être rédhibitoire lorsque l'objectif est de quantifier le plutonium présent dans des déchets radioactifs. En effet, le principal isotope du curium émetteur par fission spontanée potentiellement présent dans les colis de déchets (le ^{244}Cm avec 18 ans de période radioactive) a un taux d'émission spécifique plusieurs milliers de fois supérieur à ceux des isotopes du plutonium [14]. La présence d'une petite quantité de ^{244}Cm peut masquer le signal du plutonium en mesure neutronique passive des coïncidences. Dans ce cas, il faut faire appel à d'autres méthodes.

1.1.2.3 Calorimétrie

La calorimétrie peut être utilisée pour caractériser des déchets tritiés ou émetteurs α [2] comme le plutonium. Elle correspond à la mesure quantitative du transfert de chaleur d'un système à un autre, en l'occurrence du colis de déchets radioactifs vers son environnement [7]. Presque toute l'énergie émise lors de la décroissance des matériaux radioactifs sous forme de rayonnements est absorbée sous forme de chaleur, à l'exception d'une petite fraction des rayonnements gamma dans certains cas. Les isotopes de l'uranium et du plutonium génèrent de la chaleur lors de leur décroissance, mais seul le plutonium en produit à un taux assez élevé pour être mesurable par calorimétrie. Il s'agit alors de convertir la puissance calorimétrique mesurée en masse de plutonium. L'avantage majeur de cette méthode est sa très faible sensibilité à l'atténuation des rayonnements par les matrices de déchets et aux effets de position du contaminant dans les colis [7]. C'est la technique non-destructive la plus fiable pour quantifier la teneur en plutonium ou en tritium dans une matrice [2] mais le temps d'examen par colis est très long, au minimum 72 h pour un conteneur de 200 L [15]. Elle est donc difficilement applicable en routine à des colis de grand volume mais présente un intérêt ponctuellement en expertise. De plus, elle ne permet pas de discriminer la chaleur produite par les différents isotopes radioactifs (matières nucléaires, produits de fission ou d'activation), ni celle due aux réactions chimiques se produisant dans l'échantillon à analyser.

1.1.3 Méthodes de caractérisation non-destructive actives

Comme nous l'avons vu dans la section précédente, les méthodes passives sont simples à mettre en œuvre et peuvent fournir des informations sur l'identité des actinides présents dans un colis de déchets radioactifs et sur leur quantité. Cependant, il existe certains cas où ces techniques ne peuvent être mises en place. Les mesures neutroniques passives sont inefficaces lorsque le taux de fission spontanée des matériaux fissiles à quantifier est trop faible ou que des émetteurs plus intenses sont présents (Cm, Am) [2]. Aussi, la spectrométrie gamma passive requiert que le colis à examiner ne soit pas trop dense, sous peine d'une forte atténuation des rayonnements émis par les radio-isotopes d'intérêt. Bien que la calorimétrie soit moins sensible à ces phénomènes d'atténuation, elle demande des temps de mesure très longs et est de ce fait inapplicable en routine sur des colis très volumineux. Des méthodes actives non-destructives utilisant des sources externes de rayonnement doivent être mises en place pour obtenir des informations complémentaires (méthodes d'imagerie) ou induire des réactions nucléaires (méthodes d'interrogation) quand les désintégrations spontanées exploitées dans les méthodes passives ne suffisent pas.

1.1.3.1 Imagerie

L'imagerie par des photons de haute énergie permet d'obtenir des informations [2] sur la structure interne des colis de déchets de grande dimension constitués de matériaux denses [16], telles que la densité, la forme, la position du contaminant, les matrices d'enrobage et de maintien ou la présence d'écrans internes, sans faire appel à des techniques destructives. Le colis à analyser est placé entre une source de photons et un détecteur. Au vu de la grande variété de colis en termes d'épaisseurs, de volumes, de densités et de matériaux, une source très énergétique de photons est nécessaire. Elle peut être obtenue via un accélérateur linéaire d'électrons dont le principe est expliqué dans la Section 1.1.4.1.2. L'image délivrée par le détecteur caractérise alors l'absorption des photons à travers l'objet. Deux techniques d'imagerie sont couramment utilisées. La première est la radiographie, qui fournit une projection de l'objet avec une résolution de l'ordre du millimètre [2]. La publication de Carrel *et al.* [17] montre qu'il est intéressant de coupler la radiographie à d'autres méthodes de mesure passives ou actives, entre autres pour confirmer qu'une matrice de déchets est homogène. La seconde technique d'imagerie est la tomographie qui requiert différentes projections angulaires du colis, et dont on voit le principe sur la Figure 1.4. La reconstruction de l'image interne se fait ensuite grâce à des algorithmes dédiés, et permet d'accéder notamment à des valeurs de densité [2]. Un exemple de résultats issus des deux techniques d'imagerie est donné en Figure 1.5.

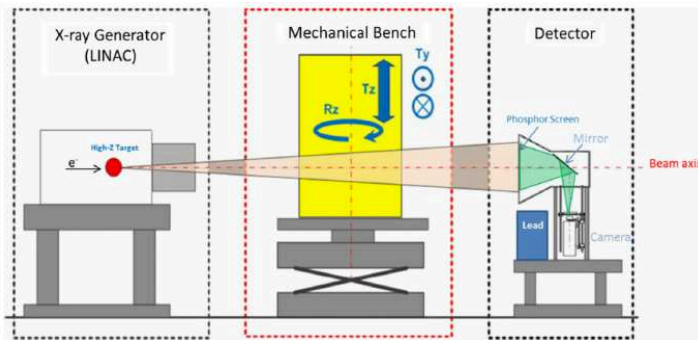


FIGURE 1.4 – Principaux composants du système d'imagerie haute énergie [2].

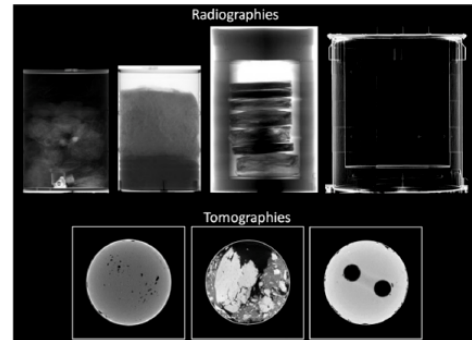


FIGURE 1.5 – Exemple de radiographies et de tomographies sur des colis de déchets [2].

Les informations apportées par les techniques d'imagerie sont primordiales afin de procéder à une identification et surtout à une quantification des actinides présents dans un colis de déchets radioactifs. En effet, elle permet potentiellement de préciser la distribution spatiale de la matière nucléaire, la densité de la matrice et la présence d'hétérogénéités et d'enveloppes internes. Tous ces détails physiques internes orientent l'utilisation par la suite d'une méthode d'interrogation active plutôt qu'une autre, ces dernières étant décrites dans les sections suivantes.

1.1.3.2 Interrogation Neutronique Active (INA)

L'Interrogation Neutronique Active utilise une source de neutrons externe pour induire la fission des actinides fissiles présents dans les colis de déchets (essentiellement ^{235}U , ^{239}Pu et ^{241}Pu). Elle consiste à détecter les particules émises pendant ou après la fission, en extrayant le signal utile du signal d'interrogation neutronique. Cette technique comporte plusieurs approches [2] :

- Mesure des neutrons prompts

Cette première approche utilise dans la plupart des cas un générateur de neutrons de 14 MeV en mode pulsé [18], mais peut aussi être basée sur un accélérateur d'électrons et une cible de conversion photoneutronique [19]. Les neutrons rapides émis initialement sont ralentis jusqu'à la thermalisation, et ils induisent des fissions produisant des neutrons prompts dont l'énergie peut être discriminée de celle des neutrons composant le flux thermique. Pour cela, des détecteurs à ^3He sont positionnés dans des blocs de polyéthylène qui ralentissent les neutrons prompts rapides. Pour séparer ces neutrons prompts du flux de neutrons thermiques d'interrogation, le polyéthylène est recouvert de B_4C ou de cadmium qui absorbent les neutrons thermiques. Cette approche est appelée DDT (*Differential Die-away Tech-*

nique) [20]. Le signal mesuré par les détecteurs contient une composante prompte proportionnelle à la quantité de matière fissile via un coefficient d'étalonnage propre à chaque matrice de déchets.

- Mesure des neutrons retardés

Cette seconde approche comporte d'abord une phase d'irradiation du colis avec des neutrons sur une large gamme en énergie pour provoquer des fissions, puis un comptage des neutrons retardés résultant des fissions induites. Pour cette méthode, une source de neutrons isotrope peut être utilisée. Bien que l'on cherche à caractériser les noyaux fissiles, un signal provenant des noyaux fertiles comme ^{238}U peut être présent selon l'énergie des neutrons d'interrogation, et cette information peut être utilisée pour différencier l'uranium et le plutonium [21]. Cette technique permet une caractérisation globale d'un colis de déchets mais est néanmoins sensible à la matrice des déchets, leur position dans le colis et à l'effet d'autoprotection des noyaux fissiles. Quand ces effets sont maîtrisés, cette méthode est très sensible et peut détecter à partir de quelques dizaines de milligrammes de matière fissile [2]. Comme pour les mesures neutroniques passives vues dans la Section 1.1.2.2, l'Interrogation Neutronique Active avec détection de neutrons retardés ne permet pas d'accéder à la composition isotopique de la matière fissile. Cette dernière doit donc être déduite à partir d'un spectre de référence ou mesurée par spectrométrie gamma. L'étude de Sari *et al.* [19] a montré que le rapport entre les signaux des neutrons prompts et retardés est dépendant de l'actinide considéré et quasiment constant en fonction de la masse irradiée. Ainsi, une bonne connaissance de la configuration expérimentale et une comparaison avec le nombre théorique de neutrons émis par les actinides pourraient permettre d'identifier la matière nucléaire en présence.

Bien que l'Interrogation Neutronique Active soit utile pour la caractérisation de colis de déchets radioactifs, grâce à sa sensibilité qui permet d'atteindre des limites de détection de moins d'un gramme de matière fissile, elle reste une méthode très dépendante du contenu hydrogéné. Ce dernier peut atténuer fortement le signal neutronique, doublement dans le cas de l'INA avec détection de neutrons. D'une part, les neutrons interrogateurs peuvent être absorbés avant d'atteindre les actinides à quantifier, et d'autre part, le flux des neutrons de fission, signature de la présence d'actinides, peut être atténué dans la matrice hydrogénée avant de sortir du colis.

1.1.3.3 Activation neutronique

L'analyse par activation neutronique (connue internationalement sous l'acronyme NAA, Neutron Activation Analysis) utilise une source de neutrons pour irradier un matériau et y provoquer des diffusions inélastiques, captures radiatives et autres réactions donnant naissance à des isotopes instables. La détection des rayonnements gamma émis suite à la désintégration de ces derniers, entre les impulsions d'un générateur de neutrons pulsé ou après l'irradiation, constitue la technique appelée DGNAA (Delayed-Gamma Neutron Activation Analysis). La mesure des rayonnements gamma prompts de diffusion inélastique ou de capture radiative (ces derniers sont mesurés généralement entre les impulsions du générateur) pendant l'irradiation est appelée PGNAA (Prompt-Gamma Neutron Activation Analysis). Les raies gamma détectées permettent d'identifier les isotopes émetteurs grâce à leur énergie (leur période radioactive peut aussi être utilisée si elle est mesurable) et de les quantifier [22, 23] en analysant le nombre de gamma détectés. Les méthodes d'activation neutronique peuvent être utiles dans le cadre de la caractérisation de colis de déchets radioactifs pour détecter des produits chimiques toxiques ou des éléments qui peuvent influencer les résultats obtenus par les différentes techniques de mesure, comme les modérateurs de neutrons ou des absorbants neutroniques [2].

Il est important de noter que l'activation neutronique peut également servir de moyen de caractérisation des matières nucléaires [22, 24]. Une étude a été effectuée par Norman *et al.* [25] en irradiant des échantillons de matière nucléaire et des supports avec un flux de neutrons thermalisés. Elle montre que des gamma retardés de haute énergie (plus de 3 MeV) sont émis par les produits de fission, majoritairement à vie courte, au-delà de l'énergie des gamma émis par les produits d'activation. Dans les colis de déchets, des produits de fission ayant une période de plusieurs années peuvent aussi être présents (déchets de l'aval du cycle et des laboratoires de recherche) mais ils émettent aussi des gamma retardés d'énergie inférieure à 3 MeV, comme les produits d'activation. Une méthode envisageable pour identifier les matériaux nucléaires serait donc d'intégrer le nombre de rayonnements gamma retardés émis à haute énergie, juste après l'Interrogation Neutronique Active (produits de fission à vie courte),

ce qui est possible avec des détecteurs de basse résolution, peu onéreux et permettant d'atteindre une grande efficacité de détection [26]. Néanmoins, la sensibilité est nettement moins bonne que celle que nous allons étudier avec la photofission dans le cadre de cette thèse, et insuffisante pour les colis de déchets bétonnés avec l'utilisation des générateurs de neutrons DT (deutérium-tritium) courants.

L'application de la méthode d'activation neutronique en utilisant la spectrométrie gamma haute-résolution (notamment en vue d'une différenciation entre les actinides) peut se retrouver limitée, comme dans le cas d'un colis bétonné de 220 L contenant du ^{137}Cs responsable d'un fort bruit de fond gamma passif, objet d'une étude de faisabilité effectuée par Nicol *et al.* [22]. Dans le cas de ce colis de volume limité, les limites de détection pour l' ^{235}U et le ^{239}Pu atteignent déjà plusieurs dizaines de grammes pour de la matière distribuée de façon homogène. De larges incertitudes de mesures peuvent donc se présenter dans le cas de la caractérisation de colis de 870 L, d'autant plus si la masse fissile est distribuée de façon hétérogène dans le colis [27]. Une application fiable de l'activation neutronique requiert de connaître très précisément la teneur du colis de déchets en matière hydrogénée, ainsi que la distribution de la matière dans celui-ci, ces paramètres pouvant avoir une très grande incidence sur la propagation des neutrons. Pour pallier ces difficultés, l'Interrogation Photonique Active, objet de cette thèse, est en cours de développement.

1.1.3.4 Interrogation Photonique Active (IPA)

Comme mentionné dans l'introduction, un programme pluriannuel pour la gestion des déchets de l'INB 56 du CEA Cadarache est en cours. Les déchets concernés sont des colis de catégorie MA-VL (*cf.* Section 1.1.1 et Tableau 1.6) pouvant être hétérogènes, avoir un volume important ainsi qu'une variabilité en termes de contenu hydrogéné. L'INA n'est donc pas toujours applicable pour la quantification de la masse fissile à l'intérieur. C'est dans ce contexte que l'utilisation d'une méthode de caractérisation non-destructive employant la photofission s'avère d'un grand intérêt. En effet, dans ce cas les particules interrogatrices sont des photons de haute énergie, pénétrants et peu sensibles au contenu hydrogéné des colis. Ces photons interrogateurs de plus de 6 MeV (énergie seuil pour la photofission) provoquent la fission des actinides, ouvrant la voie à une interrogation sélective de la matière. L'Interrogation Photonique Active (IPA), étudiée au CEA depuis les années 1990, a déjà fait l'objet de plusieurs thèses [28-34] et constitue aussi l'objet de celle-ci. À long terme, si son potentiel est vérifié, cette méthode pourrait permettre de « recatégoriser » des colis de déchets radioactifs à un niveau inférieur à leur classement MA-VL (*i.e.* avec une activité inférieure en radioéléments à vie longue) et donc de réduire les coûts de leur stockage définitif, en surface ou sub-surface plutôt qu'en couches géologiques profondes. À titre indicatif, le coût de stockage en profondeur des déchets MA-VL dans l'installation CIGEO est estimé à plus de 100 k€ par m^3 [35] contre quelques milliers d'euros pour un stockage en surface [36]. À moyen terme, elle pourrait aussi constituer un atout pour le transfert des colis d'une installation ancienne, l'INB 56, vers l'installation d'entreposage plus récente, CEDRA [37] (Conditionnement et Entreposage des Déchets RAdioactifs), au CEA de Cadarache, dont un des critères d'acceptation des colis est qu'ils ne contiennent pas plus de 200 g de matière fissile, incertitudes comprises.

1.1.4 L'utilisation de la photofission pour la caractérisation de colis de déchets radioactifs

1.1.4.1 Principe de la photofission

1.1.4.1.1 Processus de fission

La fission de l'uranium a été observée en 1938 [38], en utilisant des neutrons comme projectiles. Au début des années 1940, c'est au tour de sa fission spontanée d'être mise en évidence. Le noyau atomique est sujet à une opposition entre la force nucléaire attractive et la force coulombienne répulsive. La fission est observable lorsqu'une particule de nature et d'énergie appropriées pénètre dans un noyau susceptible de subir la réaction de fission et qu'un déséquilibre en faveur de l'interaction coulombienne se crée. Le noyau composé, formé du noyau initial et du projectile, se déforme, oscille et se sépare en plusieurs fragments plus légers, à condition que la particule incidente ait une énergie suffisante pour

permettre le franchissement de la barrière coulombienne. Indépendamment de son origine, une fission libère en moyenne 200 MeV. Dans la plupart des cas, le noyau lourd se scinde en deux fragments, qui emportent environ 160 MeV. Le reste de l'énergie est emporté par les neutrons et gamma prompts émis par les fragments de fission produits dans un état excité [32]. Une fois désexcités, les fragments sont appelés produits de fission. Ils sont en excès de neutrons par rapport à la vallée de stabilité, et ont donc tendance à subir des désintégrations β^- successives suivies d'émission de gamma, dits retardés, voire à émettre des neutrons retardés et on les qualifie alors de "précurseurs". Un schéma de principe de la fission est donné dans la Figure 1.6.

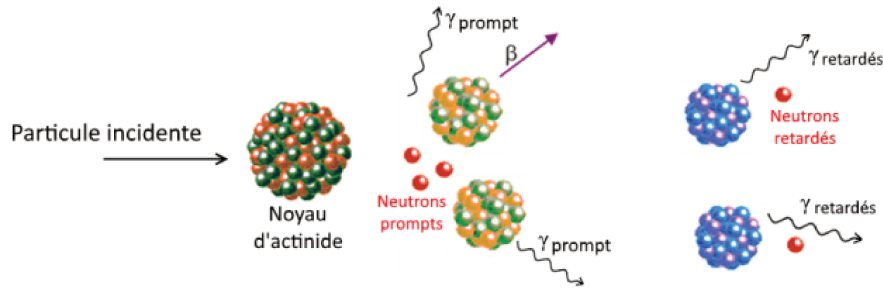


FIGURE 1.6 – Principe de la fission [39].

La réaction de fission neutronique se produit en envoyant un flux de neutrons sur le noyau et on distingue deux cas. La fission thermique intervient avec une probabilité significative seulement pour les noyaux dits « fissiles » comme l' ^{235}U , le ^{239}Pu ou encore le ^{241}Pu . La fission par neutrons rapides (quelques MeV) est quant à elle possible pour tous les actinides, car elle est provoquée par l'apport d'énergie cinétique via la particule incidente. La probabilité d'occurrence d'une réaction est directement liée à sa section efficace. La Figure 1.7 illustre les deux types de fissions neutroniques en présentant les sections efficaces de fission pour l' ^{235}U , l' ^{238}U et le ^{239}Pu . Pour des neutrons thermiques, la section efficace de fission se situe aux alentours de 590 b pour l' ^{235}U et 750 b pour le ^{239}Pu . Elle présente environ 7 décades d'écart entre $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ et ^{238}U , montrant ainsi le caractère fissile des deux premiers isotopes. Pour des neutrons d'énergie supérieure au MeV, les trois sections efficaces se rejoignent à des valeurs de l'ordre du barn, illustrant le fait que les neutrons rapides peuvent faire fissionner tous les actinides.

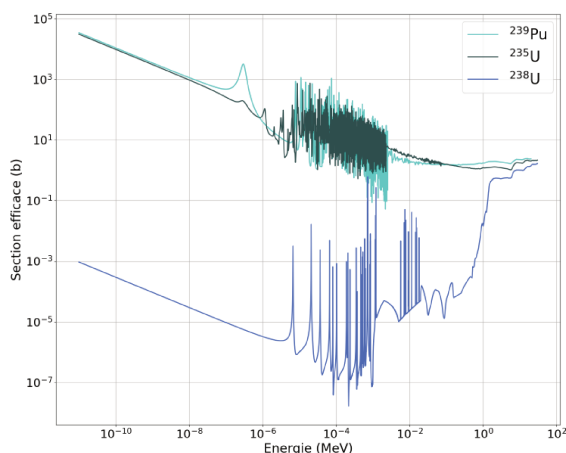


FIGURE 1.7 – Sections efficaces de fission neutronique pour l' ^{235}U , l' ^{238}U et le ^{239}Pu , issues de la base de données ENDF B-VIII.0 [40].

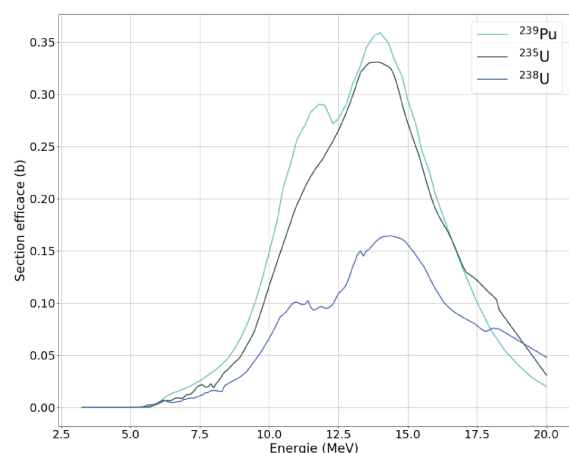


FIGURE 1.8 – Sections efficaces de photofission pour l' ^{235}U , l' ^{238}U et le ^{239}Pu , issues de la base de données ENDF B-VIII.0 [40].

Comme le montre la Figure 1.8, la photofission nécessite d'irradier un objet avec une source de photons de haute énergie. Elle a été prédite par Bohr et Wheeler dès 1939 [41] et observée en 1940 [42]. Hors effet tunnel, tout comme la fission neutronique, la fission par photons est une réaction à seuil nécessitant un apport d'énergie supérieur à la barrière de fission. La hauteur de la barrière de fission varie peu selon les actinides, elle se situe entre 5 et 6 MeV [29]. Tous les actinides peuvent la

subir avec une probabilité du même ordre et relativement faible, avec des sections efficaces atteignant au maximum quelques dixièmes de barn. Le Tableau 1.3 donne les seuils de photofission pour les principaux actinides.

TABLEAU 1.3 – Seuil de photofission pour les principaux actinides [43].

Isotope	Énergie seuil (MeV)
^{232}Th	6,0
^{233}U	5,7
^{235}U	5,8
^{238}U	5,8
^{237}Np	5,6
^{239}Pu	5,8

Pour les noyaux lourds, une résonance dipolaire géante est observée concernant la section efficace d'absorption des photons entre 10 et 30 MeV [34]. La section efficace de photofission pour les actinides, dont celle des principaux isotopes d'intérêt dans les colis de déchets (^{235}U , ^{238}U et ^{239}Pu) est montrée sur la Figure 1.8. Elle suit l'allure générale de cette résonance dipolaire géante et présente un maximum vers 14 MeV. La valeur maximale (quelques dixièmes de barn) est très faible par rapport aux sections efficaces de fission par des neutrons thermiques pour les noyaux fissiles ^{235}U et ^{239}Pu (plusieurs centaines de barns), elle est même inférieure aux sections efficaces de fission par neutrons rapides (de l'ordre du barn). Nous verrons que ces ordres de grandeur sont importants pour la mise en œuvre pratique de la méthode, pour estimer la part des fissions neutroniques par rapport aux photofissions.

1.1.4.1.2 Source de photons

Les sources isotopiques peuvent produire des photons avec une intensité élevée, mais leur énergie est trop faible (par exemple la raie à 661,7 keV du $^{137\text{m}}\text{Ba}$ issu de la décroissance du ^{137}Cs , ou encore les raies à 1,17 MeV et 1,33 MeV du ^{60}Co) pour être utilisée afin d'induire des photofissions. Des expériences de photofission sur l' ^{238}U ont également été effectuées en utilisant des photons de 17,5 MeV produits par la réaction $^7\text{Li}(p,\gamma)2(^4\text{He})$ [44] mais avec un flux de particules interrogatrices limité. Cet inconvénient peut être dépassé en utilisant une autre méthode de production des photons par diffusion Compton inverse [45]. Le principe repose sur la collision entre des électrons relativistes produits par un accélérateur, et des photons, donnant lieu à une diffusion Compton inverse. Dans l'installation HI γ S (High Intensity γ -ray Source) aux États-Unis, les photons sont issus d'un laser à électrons libres alimenté par les électrons accélérés dans un anneau de stockage. Les photons issus de la diffusion Compton inverse sont ensuite sélectionnés selon leur angle de diffusion (et donc leur énergie), par un collimateur en aluminium. En résulte un faisceau de photons d'énergie sélectionnable entre 1 et 100 MeV, intense (production totale de $3 \cdot 10^{10} \gamma \cdot \text{s}^{-1}$ aux alentours de 10 MeV) [46], quasi-monoénergétique (étalement en énergie autour du centroïde caractérisé par une largeur à mi-hauteur de 2% pour des photons de 13 MeV [47]). Cette dernière méthode de production de photons offre de belles perspectives dans l'étude du phénomène de photofission, en particulier à des énergies proches du seuil. Cependant, elle requiert actuellement la mise à disposition d'un laboratoire de grande échelle (plusieurs dizaines de mètres), pour l'amplification laser, ce qui rend sa mise en œuvre industrielle difficilement envisageable à court terme.

Pour étudier la photofission dans le cadre d'un laboratoire de taille modeste comme le LMN, non dédié aux sources laser de grande puissance, une source de photons de haute énergie plus compacte est requise. Les accélérateurs linéaires d'électrons (LINAC) peuvent remplir ce rôle, via le phénomène de rayonnement de freinage, aussi appelé *Bremsstrahlung*. Des électrons sont accélérés jusqu'à atteindre plusieurs MeV, puis freinés dans une cible de conversion en matériau lourd. Une partie de l'énergie cinétique des électrons est convertie en rayonnement de freinage (on parle aussi couramment de rayons X par analogie avec l'imagerie médicale) et l'autre partie est dissipée sous forme de chaleur dans la cible [31]. Le spectre de photons résultant s'étend de 0 à l'énergie maximale des électrons, avec

une distribution illustrée en Figure 1.9, ici obtenue par simulation Monte-Carlo avec des électrons de 15,8 MeV incidents sur une cible de tungstène de 5 mm d'épaisseur. L'épaisseur de la cible de conversion est optimisée pour que le rendement de *Bremsstrahlung* (part de l'énergie cinétique des électrons convertie en rayonnement de freinage) soit maximal et que la production parasite de photoneutrons par réactions (γ, xn) soit limitée. Le matériau idéal présente une section efficace de production de photons de freinage importante et un seuil en énergie de réaction (γ, n) élevé. À titre d'exemple, une cible d'or produit légèrement plus de photons qu'une cible de tungstène [48] avec une énergie seuil pour la production de photoneutrons de 8 MeV pour l'or et d'environ 7 MeV pour le tungstène (selon l'isotope naturellement présent considéré) [29]. Le matériau le plus utilisé est le tungstène, notamment car il présente un haut point de fusion comparé à d'autres matériaux.

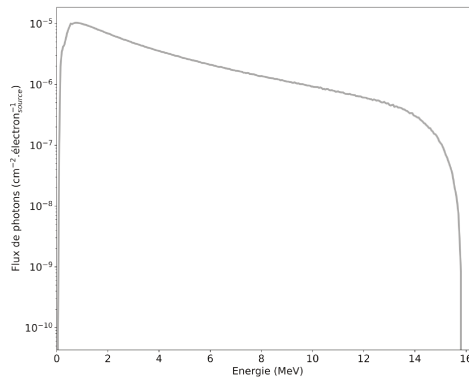


FIGURE 1.9 – Spectre de *Bremsstrahlung* simulé avec des électrons de 15,8 MeV et une cible en tungstène de 5 mm d'épaisseur.

1.1.4.2 Caractérisation de colis de déchets radioactifs

L'Interrogation Photonique Active peut être utilisée afin de provoquer des photofissions dans la matière nucléaire présente dans les colis de déchets radioactifs. Les produits de photofission ainsi formés peuvent émettre, suite à leur désintégration radioactive, des rayonnements photoniques et neutroniques dits retardés. En analysant ces rayonnements, il est théoriquement possible de remonter à la signature des actinides présents dans le colis.

D'un point de vue international, les dispositifs utilisant la photofission à des fins de détection d'actinides dans des colis de déchets sont rares. On peut citer les essais de Dighe *et al.* [49] en Inde utilisant comme source interrogatrice des photons de *Bremsstrahlung* issus d'un LINAC de 10 MeV pour détecter une quinzaine de grammes d'oxyde de thorium placée dans un fût maquette en acier inoxydable. Ce fût mesurant 1 m de hauteur pour 50 cm de diamètre est irradié horizontalement, et les neutrons retardés comptés par des blocs contenant des détecteurs à ^3He positionnés de chaque côté. Selon les positions testées pour l'échantillon de thorium, la limite de détection est estimée à 976 ± 57 mg. Ce résultat montre que l'utilisation d'un LINAC de 10 MeV permet de détecter une faible masse d'actinide. Cependant, ces résultats demandent une analyse complémentaire dans le cas où une matrice (par exemple en béton) serait présente en plus de l'enveloppe en acier, pour se rapprocher d'un cas de colis réel.

Dans un contexte européen, le projet MICADO [50] (*Measurement and Instrumentation for Cleaning And Decommissioning Operations*) faisant partie du programme Horizon2020 a pour but de développer une plateforme de caractérisation non-destructive pour les déchets radioactifs. Elle est basée sur l'utilisation de plusieurs modules, la numérisation des données et l'automatisation des procédés. Le but final est de faciliter la caractérisation des déchets et d'améliorer leur traçabilité à un coût raisonnable. La photofission est une des quatre techniques étudiées au sein de ce projet, qui, couplée à l'imagerie haute énergie, est la solution privilégiée pour déterminer les activités en uranium et plutonium pour des colis cimentés, de haute densité ou très hydrogénés [51]. Dans ce cadre, la publication de Meleshkovskii *et al.* [52], du CEA Saclay, étudie la faisabilité de l'utilisation de l'IPA pour la caractérisation de colis 220 L contenant divers types de matrices avec l'utilisation d'un LINAC de 7 ou 9 MeV et le comptage de neutrons retardés. Bien que permettant de limiter la dose aux opérateurs en cas de mesure in situ, la mesure à 7 MeV (proche du seuil de photofission) souffre d'une faible sensibilité.

Beaucoup de travaux de R&D sur la caractérisation de colis de déchets par photofission ont eu lieu au CEA, tout d'abord avec des colis maquettes comme celui utilisé par Gmar *et al.*, représentatif d'un colis bétonné d'environ 1 m de diamètre et 1 m de hauteur [53]. Ce travail montre que le signal des neutrons retardés évolue linéairement avec la masse de ^{238}U placée au centre du colis et dépend de la densité de la matière en raison de l'auto-atténuation. L'équipe de Carrel *et al.* a réalisé des mesures sur des colis maquettes de 220 L et 870 L en 2010 [24]. Les résultats offrent des perspectives pour mesurer la composition isotopique de l'uranium à l'aide des gamma retardés. Une étude ultérieure de 2011 [54] avec un colis maquette de 870 L confirme que la localisation d'un échantillon de 50 g de ^{238}U est possible en utilisant la photofission et en détectant les gamma ou les neutrons retardés. Les travaux de Meleshenkovskii *et al.* [52] mentionnés plus haut, sur un colis maquette de 220 L avec une couche externe de béton de 6,5 cm d'épaisseur, montrent des potentialités intéressantes dans le cas de l'utilisation d'un LINAC de 9 MeV. Pour la détection des neutrons retardés en 10 min de mesure, les limites de détection estimées pour le ^{239}Pu et l' ^{238}U sont de 336 mg et 539 mg, respectivement.

En plus des colis maquettes, des mesures ont été effectuées sur des colis réels, par Gmar *et al.* [53, 55] en 2005. Les examens effectués sur un fût de 200 L rempli de déchets technologiques (non bloqués par du ciment) ont permis de confirmer l'information fournie par le producteur sur la masse de ^{239}Pu . De même, la mesure globale de photofission sur une coque bétonnée CBFC1 de 1,4 tonnes pour 1,2 m de hauteur et 84 cm de diamètre, contenant un fût de 223 L de déchets technologiques compactés [56], permet de reconstruire une masse d'actinide inférieure au gramme. Les résultats obtenus par tomographie de photofission [55] sont d'autant plus encourageants qu'ils permettent non seulement la quantification des actinides avec une incertitude moindre, mais aussi leur localisation confirmée par des mesures destructives. Saurel *et al.* [57] ont d'ailleurs utilisé la tomographie de photofission sur un colis bétonné maquette de 2,8 tonnes en 2005. Des simulations basées sur les expériences ont permis d'estimer une masse d'environ 8 g, grâce à la localisation de la matière nucléaire, plutôt que d'utiliser des hypothèses pénalisantes par manque d'information, qui conduiraient à une masse 16 fois plus importante.

L'IPA est une technique prometteuse et un couplage avec d'autres méthodes de caractérisation non-destructive la rend d'autant plus intéressante. Un de ses points forts est qu'elle est basée sur l'utilisation d'un LINAC, pouvant servir à l'application d'autres méthodes actives de caractérisation non-destructive, comme l'imagerie haute énergie ou encore l'Interrogation Neutronique Active à l'aide d'une cible de conversion photoneutronique.

En guise d'exemple, Carrel *et al.*[1] ont réalisé des mesures sur un colis réel dans le cadre du projet DEMASC (*Dismantling of Saclay's facilities*). Il s'agit d'un bloc de béton (TE 1060) de 4,4 tonnes, produit dans les années 1960, contenant un fût de 220 L avec des déchets d'uranium, entouré par une trentaine de centimètres de béton. Une photographie de ce colis est disponible sur la Figure 1.10. Ces mesures démontrent l'utilité de l'Interrogation Photonique Active couplée à l'imagerie haute énergie, qui permet d'obtenir des informations sur la densité et la localisation du fût dans le bloc, utiles pour interroger le colis efficacement. L'IPA avec détection des neutrons retardés permet de remonter à une estimation de la masse en ^{238}U quasiment 3 fois inférieure et avec une incertitude associée raisonnable $178,7 \pm 1,3$ g comparé à la spectrométrie gamma passive 495 ± 151 g.

Carrel *et al.* [54] avaient précédemment caractérisé un colis bétonné CBFC2 de 1,8 tonnes, 1 m de diamètre et 1,5 m de hauteur. Pour cela, la radiographie X à haute énergie avait déjà été couplée à l'Interrogation Photonique Active, afin de confirmer l'épaisseur de béton du colis et le remplissage du fût de déchets. En plus de cela, des techniques de caractérisation passives ont été utilisées. Le comptage neutronique passif et la spectrométrie gamma passive couplés à l'IPA en scanning vertical ont permis de localiser les déchets de plutonium dans une zone inférieure et les déchets d'uranium dans une zone supérieure du colis. Cette localisation de chaque type de déchet est précieuse : la spectrométrie gamma passive a ainsi pu être utilisée pour déterminer la composition isotopique des déchets de plutonium, confirmant la déclaration du producteur. La tomographie de photofission avec détection des neutrons retardés a également été utilisée pour connaître la distribution spatiale des déchets d'uranium. Cette publication montre la nécessité de réaliser des mesures non-destructives complémentaires à l'IPA, quand leur signal est exploitable, et montre de bonnes possibilités pour la caractérisation de colis bétonnés volumineux.

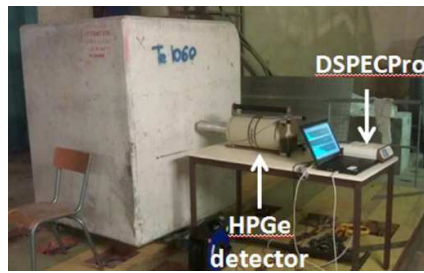


FIGURE 1.10 – Colis (bloc de béton TE1060) caractérisé par Carrel *et al.* [1].

L’IPA couplée à l’INA offre également de belles perspectives, et peut être envisagée de deux façons. Dans un premier temps, ces deux méthodes actives ont été utilisées simultanément. Ces travaux ont fait l’objet de la thèse de F. Jallu [29], donnant lieu à la méthode SIMPHONIE (*SIMultaneous PHOTon and Neutron Interrogation Experiment*). Des échantillons nus [58] puis placés dans une matrice de béton [59] ont été irradiés et les neutrons retardés ont été détectés. Le but de cette méthode est de quantifier en une seule mesure les actinides fissiles et fertiles au sens de la fission neutronique. Le principe repose sur l’émission des neutrons prompts issus des fissions thermiques neutroniques qui intervient plus tard que celle des neutrons prompts de photofission (ces derniers ne sont pas détectables en raison du bruit de fond dû aux photoneutrons), en raison du temps nécessaire pour thermaliser le flux de photoneutrons interrogateurs. Ainsi, la détection des neutrons prompts de fission neutronique renseigne sur la quantité de matière fissile, tandis que la détection des neutrons retardés de fission et photofission donne des informations sur la quantité totale d’actinides. Les limites de détection pour des échantillons nus d’ ^{238}U , d’ ^{235}U et de plutonium atteignent moins d’une centaine de milligrammes [58], et moins de 2 g peuvent être détectés dans un colis maquette en béton de 200 L [59].

Une autre possibilité est de réaliser les mesures par INA et par IPA l’une à la suite de l’autre, et de comparer les signaux mesurés dans chaque cas. Ainsi, l’équipe de Sari *et al.* [19] a montré que le ratio des signaux des neutrons prompts de fission neutronique thermique et des neutrons retardés de photofission est directement lié à l’enrichissement en ^{235}U des échantillons irradiés. Il en est de même pour le ratio des signaux des neutrons retardés et des gamma retardés obtenus par les deux méthodes.

Cette première partie s’est attachée à développer le contexte de la caractérisation de colis de déchets radioactifs, et à situer la méthode d’Interrogation Photonique Active parmi les autres méthodes de caractérisation non-destructive. Le phénomène de photofission mis en jeu dans cette méthode a été décrit pour les différents actinides concernés, en faisant un état des lieux des sources de photons de haute énergie pouvant provoquer la fission. Ensuite, les domaines dans lesquels la photofission est ou pourrait être utilisée ont été évoqués, pour finir sur son utilisation pour la caractérisation de colis de déchets radioactifs. Les Tableaux 1.4 et 1.5 sont proposés ci-dessous en tant que récapitulatifs des méthodes d’irradiation et de détection en IPA avec leurs caractéristiques associées. De plus, le Tableau 1.6 reprend les types de colis MA-VL entreposés sur l’INB 56, selon le catalogue descriptif des familles de l’ANDRA [60], et suggère la méthode de caractérisation active à utiliser préférentiellement. Le challenge actuel pour le CEA est de caractériser les colis de 870 L les plus anciens pour leur transfert vers CEDRA. Ce type de colis est majoritaire dans le stock MA-VL de l’INB 56 du CEA Cadarache, et pour l’instant aucune méthode de caractérisation non destructive ne s’est avérée efficace pour quantifier la masse fissile avec de faibles incertitudes.

Bien que l’IPA avec détection de neutrons retardés soit la méthode historiquement étudiée au CEA, elle souffre des mêmes inconvénients que l’INA de par l’utilisation des neutrons. Ces derniers sont extrêmement sensibles au contenu hydrogéné des colis de déchets. En considérant la variabilité des compositions de ces colis volumineux et hétérogènes bétonnés, l’utilisation de l’IPA avec détection de neutrons retardés donnerait des résultats inexploitablement ou entachés d’une incertitude inenvisageable pour la quantification de la masse fissile à l’intérieur. L’IPA avec détection de rayonnements gamma retardés reste donc la seule méthode offrant un espoir de différenciation des actinides en présence, et donc de quantification de la masse fissile. Cette thèse est donc focalisée sur le dosage et la différenciation des actinides par IPA via la mesure des rayonnements gamma retardés de photofission.




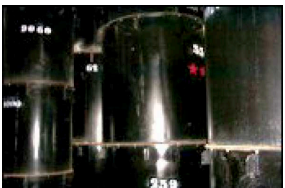
TABLEAU 1.4 – Modes d'interrogation de la matière en IPA et caractéristiques associées.

Mode d'interrogation	Schéma	Avantages	Inconvénients	Mesures en IPA
Inter-impulsions (séquentiel)		<ul style="list-style-type: none"> - Peu de signal perdu, notamment pour les émetteurs gamma à vie très courte : beaucoup de statistique 	<ul style="list-style-type: none"> - Fort bruit de fond, notamment avec l'activation de ^{18}O [57] : $^{18}\text{O}(\gamma, p)^{17}\text{N} \rightarrow ^{17}\text{O}^* \rightarrow ^{16}\text{O} + n$ $^{18}\text{O}(\gamma, d)^{16}\text{N} \rightarrow ^{16}\text{O} + \gamma(6, 13 \text{ MeV})$ - Limitations techniques selon l'accélérateur (fréquence, structure d'impulsion, stabilité) - Gestion du temps mort associé à l'électronique 	<ul style="list-style-type: none"> - Neutrons retardés [55, 57, 61, 62] - Gamma retardés [63] - Neutrons prompts si détecteurs adaptés [64, 65]
Macro-impulsions		<ul style="list-style-type: none"> - Statistique du signal retardé accrue : mesure des neutrons et gamma retardés entre les micro- et macro-impulsions \Rightarrow Meilleur rapport S/B et mesure de PF à vies plus longues - Le BDF actif décroît vite après la fin des macro-impulsions - Moins de contraintes sur les capacités de l'accélérateur 	<ul style="list-style-type: none"> - Perte du signal inter-impulsion (PF à vies très courtes) - Besoin d'un détecteur adapté, protégé du rayonnement de l'accélérateur (surtout en spectrométrie gamma) 	<ul style="list-style-type: none"> - Neutrons retardés - Gamma retardés
Post-irradiation		<ul style="list-style-type: none"> - Permet de mesurer les gamma retardés de PF avec des périodes variées - Le BDF actif décroît vite après la fin des impulsions - Détecteur moins sensible au rayonnement de l'accélérateur. 	<ul style="list-style-type: none"> - Temps de transfert vers le module de détection : perte d'information sur les PF à vies courtes (signal avec des gamma de haute énergie) 	<ul style="list-style-type: none"> - Neutrons retardés [49] - Gamma retardés [63, 66]

TABLEAU 1.5 – Types de particules détectées en IPA et caractéristiques associées.

Particules détectées	Avantages	Inconvénients	Type de détecteur
Neutrons prompts	<ul style="list-style-type: none"> - Abondance - Très énergétiques - Peu sensibles aux matériaux de Z élevé des colis 	<ul style="list-style-type: none"> - Fort bruit de fond neutronique au moment de l'émission (photoneutrons) - Forte sensibilité au contenu hydrogéné des colis 	<ul style="list-style-type: none"> - Pas directement avec des compteurs ^3He qui se retrouvent d'abord aveuglés par le flash gamma du LINAC (ionisations du gaz par les photons, causant un temps mort) puis saturés par le signal des photoneutrons (remarque : le signal des neutrons prompts de fissions neutroniques induites par les photoneutrons thermalisés peut néanmoins être mesurable [58]) - D'autres détecteurs pourraient être envisagés (comptage en coïncidence, détecteurs à activation à seuil (TAD) [64])
Neutrons retardés	<ul style="list-style-type: none"> - Permet la quantification de la matière nucléaire par photofission [57] - Peuvent être séparés des photoneutrons instantanés parasites [57] - Peu sensibles aux matériaux de Z élevé des colis 	<ul style="list-style-type: none"> - Moins nombreux et énergétiques que les neutrons prompts [57, 64, 67] - Forte sensibilité au contenu hydrogéné des colis [54] 	<ul style="list-style-type: none"> - Compteurs à ^3He nichés dans du polyéthylène enrobé de cadmium [17]
Gamma prompts	<ul style="list-style-type: none"> - Abondance - Très énergétiques 	Pas applicable, les détecteurs sont aveuglés par le flash gamma du LINAC [68]	
Gamma retardés	<ul style="list-style-type: none"> - Beaucoup plus nombreux que les neutrons retardés (environ 2 décades) [67] et que les neutrons prompts (2 à 3 fois plus) : spectre très riche - L'énergie et l'intensité sont caractéristiques du produit de photofission émetteur : possibilité de différenciation [66, 69] - Peu sensible au contenu hydrogéné des colis [54] 	<ul style="list-style-type: none"> - Présence potentielle de bruits de fond photoniques passif (émetteurs β^- comme ^{137}Cs dans le colis) et actif (activation des matériaux du colis et de la cellule d'irradiation) - Sensible aux matériaux de Z élevé des colis 	<ul style="list-style-type: none"> - Détection des gamma retardés de haute énergie avec des scintillateurs BGO ou NaI [54] - Détection des gamma retardés sur une large gamme en énergie avec un Ge HP [24]

TABLEAU 1.6 – Types de colis à caractériser issus de l'INB 56.

Colis	Illustration	Composition & dimensions	Contaminants	INA	IPA (X,n _{retardés})	IPA (X,γ _{retardés})
500 L		<ul style="list-style-type: none"> - Boues cimentées/concentrats d'évaporatoir issus du traitement des effluents - Fûts de 225 L bloqués dans des conteneurs béton de 500 L - D = 77 cm, H = 1,05 m 	Uranium et actinides contributeurs à l'activité α : ²⁴¹ Am, ^{238,239,240} Pu, et β/γ VC : ²⁴¹ Pu	Oui, teneur en H connue et déchet homogène : permet de quantifier directement la masse fissile	Oui, mais quantification globale des matières nucléaires, pas de distinction de la matière fissile ou des émetteurs α intenses (Pu)	Oui, mais quantification globale des matières nucléaires ⇒ méthode de différenciation des actinides (fissiles, alpha) à développer
		<ul style="list-style-type: none"> - Déchets solides d'exploitation, maintenance, assainissement et démantèlement - Fûts compactés de 50/70 L bloqués dans un conteneur en acier de 500 L par du ciment et/ou bitume 	Uranium et β/γ VC : ²⁴¹ Pu, ¹³⁷ Cs, ⁶⁰ Co, ⁹⁰ Sr	Insuffisante, colis hétérogènes, variabilité du contenu H	Insuffisante, variabilité du contenu H	Faisabilité à démontrer sur colis réel, selon BDF passif et actif du colis
870 L		<ul style="list-style-type: none"> - Déchets technologiques hétérogènes compactés (galettes de fûts) ou non, bloqués par du ciment - Concentrats dans fût de 700 L bloqué par du ciment dans fût de 870 L - D = 1 m, H = 1,15 m 	Uranium et actinides contributeurs à l'activité α : ^{238,239,240,242} Pu, ²⁴¹ Am, et β/γ VC : ²⁴¹ Pu et éventuellement ¹³⁷ Cs	Non, colis bétonnés hétérogènes et volumineux	<ul style="list-style-type: none"> - Pas pour la quantification, trop de variabilité de la teneur H - Éventuellement pour la localisation 	<ul style="list-style-type: none"> - Seule méthode potentielle de quantification, objet de cette thèse ⇒ méthode de différenciation des actinides (fissiles, alpha) à développer
1000 L	<i>Image indisponible</i>	Déchets solides cimentés dans des conteneurs en acier	Contributeurs à l'activité α :	Non, colis bétonnés hétérogènes et volumineux	Non, colis bétonnés hétérogènes et volumineux	Études sur les limites de volume et densité à mener
1800 L		<ul style="list-style-type: none"> - Déchets solides cimentés dans des sur-conteneurs en acier - D = 1,4 m, H = 1,33 m 	l'activité α : ^{234,235,238} U et β/γ VC : ¹³⁷ Cs, ⁹⁰ Sr, ²⁴¹ Pu...	Non, colis bétonnés hétérogènes et volumineux	Non, colis bétonnés hétérogènes et volumineux	Colis a priori trop volumineux et denses : atténuation des rayonnements interrogateurs et de ceux à détecter

1.2 Dosage et différenciation des actinides par la mesure des rayonnements gamma retardés de photofission

La mesure des rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission semble, pour l'instant, être la seule méthode permettant d'obtenir une quantification de la masse d'actinides dans des colis bétonnés volumineux et hétérogènes. Comme il a été vu dans la Section 1.1.4.1.1, tous les actinides subissent la photofission avec une section efficace du même ordre et avec une énergie seuil similaire. Afin que l'IPA présente un réel intérêt pratique, il faut qu'elle permette une différenciation des actinides, d'une part pour les aspects sûreté-criticité (estimation de la masse des matières fissiles, *i.e.*, ^{235}U et plutonium) et d'autre part pour la gestion à long terme (aiguillage vers le stockage approprié en fonction de l'activité des radioéléments à vie longue, notamment le plutonium). Dans cette partie seront détaillés les principes du dosage des actinides, puis de leur différenciation. La faisabilité sur des colis réels reste à démontrer, aussi les limitations actuelles de la méthode seront évoquées.

1.2.1 Dosage des actinides

La quantification des actinides dans un colis de déchets radioactifs est une étape primordiale. Si l'on considère un actinide localisé à un seul endroit dans un colis, une mesure du spectre de gamma retardés en post-irradiation (*cf.* Tableau 1.4) avec un détecteur de haute résolution permet de remonter à la masse d'actinide via la Formule 1.1.

$$m_{Actinide}(g) = \frac{\mathcal{M}_{Actinide}}{\mathcal{N}_A} \frac{N_{i,PFj}}{y_j \times I_i \times \varepsilon(E_i)} \frac{1}{\tau} \frac{e^{\lambda_j t_{refr}}}{(1 - e^{-\lambda_j t_{irr}})(1 - e^{-\lambda_j t_{mes}})} \quad (1.1)$$

Avec :

- $\mathcal{M}_{Actinide}$, en g.mol^{-1} , la masse molaire de l'actinide considéré, et \mathcal{N}_A , en mol^{-1} , le nombre d'Avogadro ;
- $N_{i,PFj}$ le nombre de coups net dans la raie gamma d'énergie E_i du produit de fission j ;
- λ_j , en s^{-1} , la constante de désintégration radioactive du produit de fission j ;
- y_j (sans unité) le taux de production¹ du produit de fission j qui correspond au nombre de noyaux de ce produit de fission formés par photofission ;
- I_i (sans unité) et $\varepsilon(E_i)$ (sans unité), respectivement l'intensité d'émission du gamma d'énergie E_i et l'efficacité absolue de détection à l'énergie E_i ;
- t_{irr} , t_{refr} et t_{mes} les temps d'irradiation, de refroidissement et de mesure, exprimés en s ;
- τ , en s^{-1} , le taux de photofission à l'endroit où est localisé l'actinide, détaillé dans la formule (1.2) ;

$$\tau(\text{s}^{-1}) = \int_{E_{seuil}}^{E_{max}} \sigma_{(\gamma,f)}(E) \phi(E) C_{att}(E) dE \quad (1.2)$$

Comprenant :

- E_{seuil} et E_{max} , respectivement l'énergie seuil de la réaction de photofission et l'énergie de fin du faisceau de *Bremsstrahlung* ;
- $\sigma_{(\gamma,f)}(E)$, en cm^2 , la section efficace de photofission à l'énergie E ;
- $\phi(E)$, en $\text{cm}^2.\text{s}^{-1}$, le flux de photons de *Bremsstrahlung* d'énergie E pour l'actinide considéré ;
- $C_{att}(E)$ (sans unité) un coefficient traduisant l'atténuation du rayonnement interrogateur au sein du colis et de la matière nucléaire pour des photons d'énergie E .

1. Également appelé rendement de fission, on en distingue deux types :

- le rendement de fission indépendant correspond à la probabilité de formation du produit de fission après l'émission des particules promptes et avant sa décroissance radioactive,
- le rendement de fission cumulatif correspond à la probabilité de formation du produit de fission directement après la fission et par accumulation due à la décroissance radioactive.

Au vu des données requises pour estimer la masse, on peut en déduire que la localisation des actinides dans le colis est nécessaire pour fournir une quantification précise car :

- pour les photons interrogateurs, le flux dépend de la distance depuis la cible de conversion et le coefficient d'atténuation dépend des épaisseurs de matériaux traversés dans le colis jusqu'à la matière nucléaire ;
- pour les gamma retardés de photofission, le rendement de détection dépend de la distance à laquelle est située la matière à quantifier du détecteur, via l'efficacité géométrique, et au même titre que les photons interrogateurs, des épaisseurs de matériaux traversés au sein du colis.

La localisation de la matière nucléaire peut être obtenue par une tomographie d'émission de photofission [70]. Par exemple, cette technique appliquée avec la détection de neutrons retardés sur un colis réel CBFC1 de 1,4 tonnes, 1,2 m de hauteur et 84 cm de diamètre, contenant un fût de 223 L coulé dans du béton [55, 56], a permis d'estimer une position centrée des actinides qui a été confirmée par une analyse destructive du colis. En 2010, Carrel *et al.* [17] ont aussi réalisé ce type d'examen sur un colis bétonné CBFC2 de 1,8 tonnes, 1 m de diamètre et 1,5 m de hauteur, révélant une distribution non-centrée de l'uranium en présence. En 2014, Carrel *et al.* [1] ont utilisé la tomographie de photofission avec détection de neutrons retardés à l'altitude d'un point sur un colis bétonné (bloc TE1060 présenté sur la Figure 1.10) de 4,4 tonnes, haut de 1,5 m et large de 1,2 m, montrant encore une fois une distribution d'actinides en périphérie. La tomographie de photofission est également envisageable en détectant les gamma retardés [54, 56], qui donnent des résultats complémentaires aux neutrons retardés, et avec une meilleure sensibilité car ces derniers sont fortement atténués par le contenu hydrogéné des colis.

L'atténuation des rayonnements interrogateurs et induits de photofission dépend aussi de la composition du colis, via la densité et le numéro atomique de ses éléments. C'est pourquoi une caractérisation préalable par imagerie X est généralement très précieuse. En particulier, la tomographie bi-énergie [71], basée sur l'inspection du colis avec un faisceau interrogateur à deux énergies suffisamment éloignées, permet de remonter à un numéro atomique effectif et une valeur de densité pour chaque voxel (élément de volume). La connaissance de la structure interne du colis peut ainsi être utilisée pour le modéliser en partie, calculer les corrections d'atténuation ad hoc et ainsi réduire les incertitudes liées à l'atténuation des rayonnements d'intérêt.

Pour résumer, une quantification précise de la matière nucléaire ne peut se faire qu'avec la connaissance de la composition interne du colis (au minimum sa densité), renseignée via l'imagerie à haute énergie, et de la distribution spatiale des actinides, afin d'éviter de faire des hypothèses conservatives qui peuvent conduire à surestimer la masse d'actinide [57] de façon totalement rédhitoire (jusqu'à plusieurs décades). Cependant, la quantification de la masse d'actinide n'est pas le seul objectif de cette méthode.

1.2.2 Différenciation des actinides

1.2.2.1 Principe de la différenciation

Compte-tenu de la section efficace de photofission similaire pour tous les actinides, une méthode de discrimination est nécessaire pour différencier les contributions dues aux isotopes présents dans le colis : fissiles et fertiles pour la criticité, activité α spécifique (Bq/g) élevée ou faible pour la gestion à long terme. Une distinction entre ^{235}U et ^{238}U présente ainsi un grand intérêt, de même qu'entre les isotopes de l'uranium et ceux du plutonium, ces derniers étant bien plus pénalisants en termes d'activité α spécifique [17, 24]. Par exemple, interpréter le signal comme étant dû à du plutonium si la matière nucléaire est en réalité essentiellement de ^{238}U conduirait à surestimer largement la masse fissile (donc le risque de criticité) et de plusieurs décades l'activité α (orientation à tort du colis concerné vers CIGEO engendrant ainsi inutilement des coûts de stockage supplémentaires).

Des études réalisées depuis le début des années 1980 [72-75] ont montré que la distribution en masse des fragments de photofission dépend de l'actinide subissant la réaction. La probabilité d'une photofission asymétrique avec une séparation en deux fragments étant largement majoritaire, la distribution des fragments de fission présente deux bosses, une pour les "noyaux lourds" centrée aux alentours du nombre de masse 140, et une pour les "noyaux légers" vers le nombre de masse 95. La caractéristique importante à retenir ici est que le centroïde pour la distribution des noyaux lourds est quasiment

constant, tandis que celui pour les noyaux légers se décale vers les nombres de masse croissants quand la masse du noyau cible augmente. À titre d'illustration, des distributions en masse des fragments de photofission pour différents isotopes de l'uranium, du plutonium et de l'américium sont données en Figure 1.11.

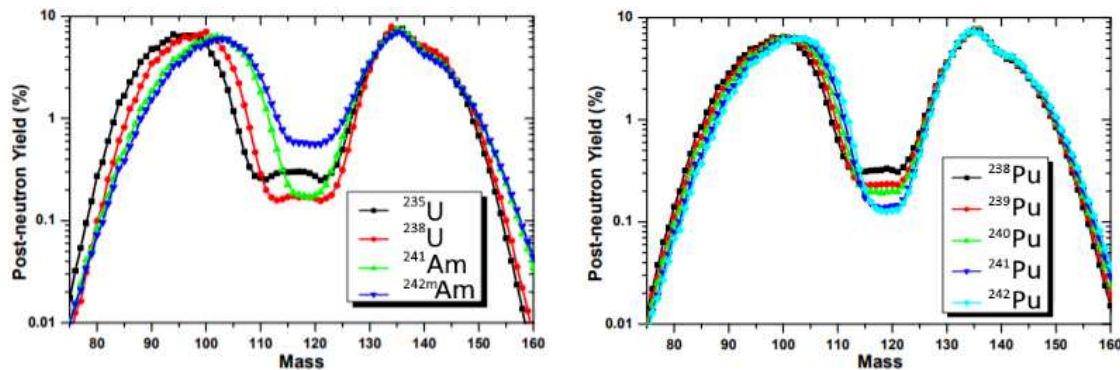


FIGURE 1.11 – Distribution en masse des fragments de photofission pour les isotopes de U, Pu et Am [76] obtenues avec le code GEF [77].

Cela permet d'expliquer les observations effectuées en 1964 par Walton *et al.* [78] concernant la photofission des isotopes ^{235}U , ^{238}U et ^{232}Th , à savoir que l'intensité intégrée des rayonnements gamma retardés d'énergie supérieure à 510 keV, sur le même intervalle de temps après l'irradiation, dépend du noyau cible. En effet, puisque la distribution en masse des fragments de fission diffère selon l'actinide, alors les produits de photofission ne seront pas créés dans les mêmes proportions. Ainsi, des gamma retardés d'énergie donnée, émis lors de la décroissance de produits de fission bien définis (par exemple un sur la bosse des noyaux lourds, l'autre sur une portion de la bosse des noyaux légers présentant de grandes différences selon les actinides), ne seront pas émis avec les mêmes proportions suivant les actinides considérés. La différenciation des actinides peut donc reposer sur les intensités des raies du spectre de gamma retardés obtenu [66] et trois familles de méthodes ont été étudiées.

1.2.2.2 Mesure du taux de production de gamma retardés à différentes énergies de faisceau

Une première méthode possible pour identifier les matériaux fissiles est de mesurer le taux de production de gamma retardés. Elle a été évoquée en 2019 par Zuyev *et al.* [79]. Comme mentionné précédemment, tous les actinides ont une énergie seuil de photofission similaire. Cependant, la section efficace varie rapidement près du seuil, comme illustré par les données de la Figure 1.12 et du Tableau 1.7. Cette équipe propose d'identifier les actinides présents en mesurant les ratios de production de gamma retardés à différentes énergies maximales de faisceau de *Bremsstrahlung*, dont une est près du seuil.

Cette méthode montre du potentiel, mais reste largement théorique puisque l'étude a été faite sur de petits échantillons de matière nucléaire. Dans le cadre de la caractérisation de déchets radioactifs, la présence d'un colis volumineux et dense atténuerait de façon conséquente le rayonnement interrogateur avec le faisceau de *Bremsstrahlung* dont l'énergie maximale est près du seuil. De plus, la section efficace étant faible à cette énergie, un flux interrogateur très intense serait nécessaire. Dans l'idéal, la méthode devrait être testée avec une source de photons monoénergétique (*cf.* Section 1.1.4.1.2) à deux énergies suffisamment éloignées dont une est près du seuil de photofission. Ces travaux sont relativement récents et demandent des études supplémentaires.

TABLEAU 1.7 – Sections efficaces de photofission de l' ^{235}U , l' ^{238}U et le ^{232}Th pour différentes énergies, issues de la base de données ENDF B-V.III.0 [40].

Section efficace	^{232}Th	^{235}U	^{238}U
$\sigma(8,5 \text{ MeV})$ (mb)	13	36	22
$\sigma(5,5 \text{ MeV})$ (mb)	0,11	0,23	1
$\sigma(8,5 \text{ MeV})/\sigma(5,5 \text{ MeV})$	118	156	22

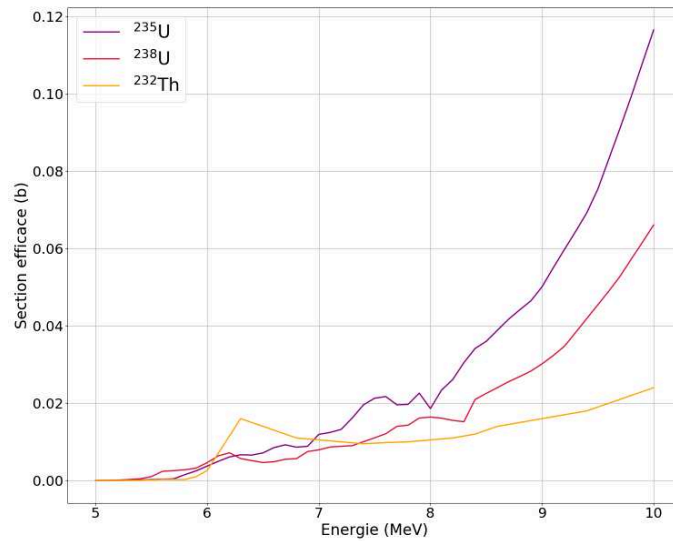


FIGURE 1.12 – Sections efficaces de photofission pour l' ^{235}U , l' ^{238}U et le ^{232}Th près du seuil, issues de la base de données ENDF B-VIII.0 [40].

1.2.2.3 Comptage total des gamma de haute énergie

Une autre méthode consiste à focaliser la détection sur les gamma retardés de photofission de haute énergie ($E_\gamma > 3 \text{ MeV}$). L'étude de Norman *et al.* [25] avait montré que ces derniers, émis à la suite de la fission induite par neutrons, sont émis par les produits de fission, majoritairement à vie courte, et non par les produits d'activation ou de fission à vie longue (plusieurs années), potentiellement présents dans les colis de déchets radioactifs (^{60}Co , ^{137}Cs ...). Cette observation a, de la même façon, été faite par Gmar *et al.* [68] pour la photofission. Cependant, l'émission totale de gamma retardés au-delà de 3 MeV est difficile à estimer par simulation numérique, puisque les raies à ces énergies élevées sont souvent peu intenses et les taux de production des produits de photofission sont parfois mal connus (voir Section 1.2.3.3). Gmar *et al.* [68] proposent alors de diviser le spectre en large canaux d'énergie, et pour chaque groupe d'énergie, d'analyser le temps de décroissance comme une somme d'exponentielles, de la même façon que pour les groupes de précurseurs de neutrons retardés. Ce type d'étude a été entrepris en 2009 par Dighe *et al.* [49], d'abord sur un échantillon de ^{237}Np . Les paramètres pour chacun des groupes de gamma retardés constituent une signature unique pour chaque actinide.

Plutôt que de focaliser la détection sur les gamma retardés de haute énergie uniquement, il est possible de former un ratio de ceux-ci avec le signal de neutrons retardés. Un avantage est que la mesure combinée permet de dépasser certains effets de matrice rencontrés avec des matériaux de numéro atomique élevé pour les gamma retardés ou la présence d'éléments légers comme l'hydrogène pour les neutrons retardés. Gmar *et al.* [68] montrent que l'irradiation d'échantillons d'uranium avec des enrichissements différents mène à un ratio des signaux de gamma retardés et neutrons retardés qui augmente linéairement avec la teneur en ^{235}U . Ce même ratio a été étudié par Carrel *et al.* [54] sur des échantillons de ^{235}U , ^{238}U et ^{239}Pu , les résultats sont reportés dans le Tableau 1.8. Cela confirme que ce ratio dépend de la nature des actinides, dans le cas d'échantillons nus. Par contre, en présence de matrice hydrogénée dont la teneur en hydrogène est mal connue, les neutrons seraient très affectés, contrairement aux rayonnements gamma. Par conséquent, l'étude de ratio pourrait se retrouver dépourvue de sens.

TABLEAU 1.8 – Ratio des signaux gamma retardés de haute énergie et neutrons retardés en fonction de la matière irradiée [24].

	^{238}U - 99,3 %	^{235}U - 85 %	^{239}Pu - 94 %
$\frac{\gamma \text{ retardés haute énergie}}{\text{neutrons retardés}}$	$0,638 \pm 0,015$	$1,395 \pm 0,019$	$2,497 \pm 0,124$

Le comptage des rayonnements gamma retardés de haute énergie peut apporter une information isotopique. De plus, il peut être réalisé avec des détecteurs de faible résolution comme des scintillateurs BGO (germanate de bismuth) de haute densité, qui présentent un coût inférieur aux traditionnels détecteurs germanium utilisés en spectrométrie gamma. Cependant, pour que cette méthode montre tout son potentiel pour la discrimination des actinides, des données nucléaires concernant les gamma retardés de haute énergie doivent être mesurées pour les actinides d'intérêt. Le comptage des gamma de haute énergie a été testé par Carrel *et al.* [1, 54] pour la première fois sur un colis réel bétonné et volumineux, mais seulement dans un but de localisation des actinides. Cela montre néanmoins qu'un signal est détectable et cette piste sera mentionnée dans cette thèse.

1.2.2.4 Spectrométrie gamma haute-résolution avec détecteur Ge HP

La dernière méthode envisagée est d'étudier des ratios de raies de gamma retardés, leur intensité pouvant être utilisée pour identifier les actinides présents. L'avantage est que les ratios sont indépendants du nombre de photofissions induites dans la matière nucléaire. Compte-tenu de la complexité d'un spectre de gamma retardés émis par les produits de photofission, dont un exemple est donné en Figure 1.13 pour un échantillon de ^{238}U , un détecteur de haute résolution de type Ge HP (Germanium Haute Pureté) est nécessaire.

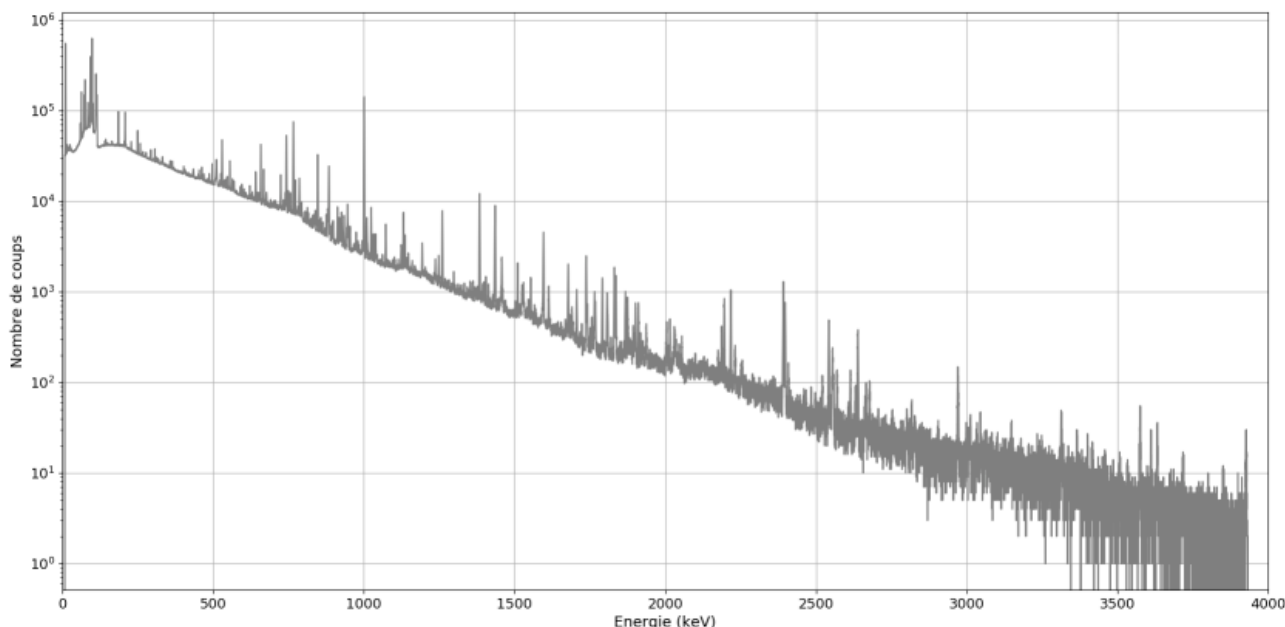


FIGURE 1.13 – Spectre de gamma retardés de photofission d'un échantillon d' ^{238}U mesuré dans le cadre de cette thèse [80].

La méthode a été testée de façon concluante par Beddingfield *et al.* [81] en mesurant les gamma retardés émis après la fission induite par neutrons, sur des échantillons de ^{235}U et ^{239}Pu . Elle se base sur l'étude de ratios de raies de gamma retardés émis par des produits de fission localisés dans des régions précises de la courbe de distribution en masse vue sur la Figure 1.14, les raies gamma du ratio devant être émises par des produits de fission ayant un taux de production assez différent selon l'actinide fissionnant. Les ratios peuvent être formés d'une raie émise par un produit de fission de la région I ou II (où les rendements sont différents entre ^{235}U et ^{239}Pu) et d'une raie de la région III (où ils sont similaires), ou bien ils peuvent être composés par des raies d'isotopes des régions I et II (voir Figure 1.14).

Selon cette même publication, les raies de gamma retardés étudiées doivent être choisies judicieusement :

- elles ne doivent pas se superposer à d'autres raies parasites pendant la période de comptage,
- leur noyau père doit avoir une demi-vie compatible avec les temps de refroidissement (de l'ordre de la minute entre la fin de l'irradiation et le début du comptage) et de comptage,

- leur énergie doit être assez élevée (au moins $\simeq 1$ MeV) pour traverser l'échantillon et la matrice de déchets,
- les raies du ratio doivent être d'énergie similaire pour s'affranchir au mieux des différences d'atténuation par la matrice et d'efficacité de détection avec l'énergie.

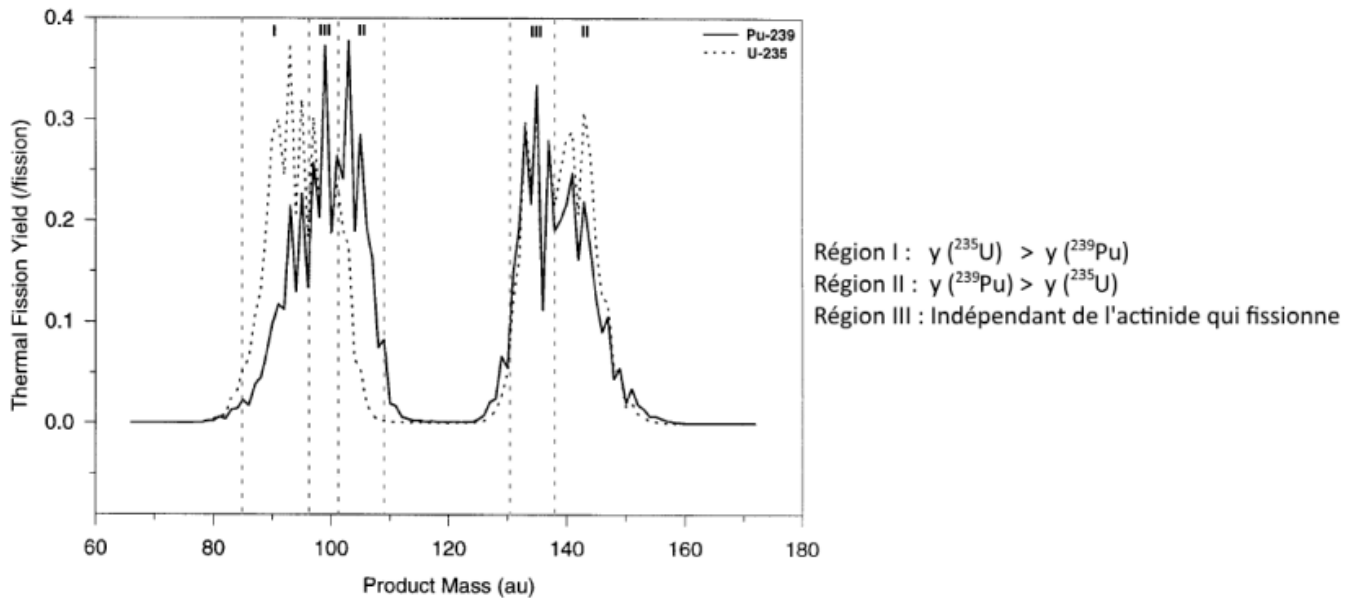


FIGURE 1.14 – Rendements de produits de fission par des neutrons thermiques pour l' ^{235}U et le ^{239}Pu [81].

La méthode de différenciation des actinides est basée sur la comparaison de l'intensité des ratios observée expérimentalement avec l'intensité des ratios calculée théoriquement pour chacun des actinides, à l'aide de fonctions de pondération. Pour réduire les incertitudes sur la composition isotopique de la matière nucléaire, il convient d'utiliser un nombre important de ratios de raies.

La méthode a été présentée jusqu'ici pour des rayonnements gamma retardés émis après la fission neutronique, mais elle est tout à fait similaire dans le cas de la photofission. Dès 1987, Hollas *et al.* [69] ont étudié des ratios de raies issus d'échantillons de thorium, uranium et plutonium. Des exemples de ratios étudiés sont donnés dans le Tableau 1.9, les raies mentionnées sont toutes comparées à la raie à 1436 keV du ^{138}Cs . Cela confirme qu'une distribution unique des intensités de rayonnements gamma existe pour chaque isotope. Ainsi, la composition isotopique d'un mélange d'actinides peut théoriquement être obtenue en combinant les réponses individuelles des différents actinides.

TABLEAU 1.9 – Ratios avec pour dénominateur la raie à 1436 keV du ^{138}Cs [69].

PF	E_γ (keV)	^{239}Pu	^{238}U	^{235}U	^{232}Th
^{94}Sr	1428	1,36	2,36	1,87	1,71
^{136}I	1313	0,73	2,40	1,23	1,09
^{89}Rb	1248	0,13	0,85	0,93	2,28
^{90}Kr	1119	0,39	1,10	1,08	1,71
^{89}Rb	1032	0,66	1,16	1,36	2,65

L'étude menée par Carrel *et al.* [24] reprend les mêmes principes, en utilisant un échantillon mixte $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$. Des exemples de ratios de raies proches en énergie utilisés à des fins de différenciation entre les deux isotopes de l'uranium sont donnés dans le Tableau 1.10. L'équipe arrive à remonter à des valeurs de fraction massique de ^{235}U très proches de la réalité (moins de 10 % d'écart pour des échantillons avec plus de 5 % de ^{235}U).

TABLEAU 1.10 – Exemples de ratios utilisés pour la différenciation [24].

Ratio de raies (keV)	Nucléides
943/918	$^{131}\text{Sb}/^{94}\text{Y}$
954/974	$^{95}\text{Y}/^{132}\text{Sb}, ^{132\text{m}}\text{Sb}$
1283/1248	$^{139}\text{Cs}/^{89}\text{Rb}$
2176/2196	$^{95}\text{Y}/^{89}\text{Rb}$

Ce travail a également mis en évidence la faisabilité de l'utilisation des ratios de raies dans le cas d'un colis maquette de 220 L avec une paroi en béton, où un échantillon d'uranium peut être placé à différents endroits. Il est ainsi montré que la position de la matière dans le colis, ainsi que la présence de polyéthylène, ont peu d'influence sur les ratios de raies. De plus, la différenciation entre les isotopes de l'uranium a montré des résultats encourageants sur ce petit colis maquette, qui plus est, dans le cas de la position la plus pénalisante au centre du colis pour des masses d'uranium de moins d'une dizaine de grammes.

Dans cette même étude [24], l'inspection d'un colis maquette de 870 L, représentatif des colis de l'INB 56 du CEA Cadarache (voir Tableau 1.6), s'est avérée beaucoup plus complexe, compte tenu de ses grandes dimensions. Avec un échantillon de 250 g d'uranium appauvri placé au centre du colis et une irradiation de 2 h, seules quelques raies de gamma retardés ont été détectées. Néanmoins, la comparaison du ratio de raies à 1384 keV (^{92}Sr) et 1436 keV (^{138}Cs) mesuré expérimentalement, avec sa valeur théorique dépendant de la teneur en ^{235}U a permis d'identifier la nature d'un échantillon au centre du colis. Ce résultat important montre que la nature de l'actinide peut être déterminée dans un colis maquette de grand volume, avec l'exploitation d'un nombre limité de ratios de raies. Malgré tout, une preuve de faisabilité est à apporter dans le cadre d'un colis réel avec un bruit de fond passif conséquent.

C'est dans ce cadre qu'une étude de faisabilité a été réalisée par simulation sur un colis bétonné de 870 L par Simon *et al.* [70]. Elle permet d'évaluer les bruits de fond passif (émissions spontanées du colis non irradié, dues essentiellement aux produits d'activation et de fission qu'il renferme, comme $^{108\text{m}}\text{Ag}$ et ^{137}Cs pour cette étude) et actif (matériaux non nucléaires activés par l'irradiation), afin de donner une estimation de la limite de détection. L'analyse est faite sur des raies de gamma retardés d'énergie supérieure à 1,3 MeV mesurés avec un cluster de 5 détecteurs Ge HP. Malgré un bruit de fond passif très élevé et cent fois plus important que le bruit de fond actif estimé, les limites de détection vont de quelques grammes à plusieurs centaines de grammes selon la densité du colis pour de l'uranium situé au centre, soit la position la plus pénalisante. Une étude de différenciation a également été menée en analysant l'évolution de ratios de raies en fonction de l'enrichissement en ^{235}U . Un point positif est que leur intensité semble relativement indépendante de la position de l'échantillon dans le colis (centrée ou périphérique), mais varie bien avec la fraction de ^{235}U . Par exemple, les ratios 1768 keV/1791 keV ($^{138}\text{Xe}/^{135}\text{I}$) et 2392 keV/2398 keV ($^{88}\text{Kr}/^{142}\text{La}$) montrent respectivement 20 % et 56 % de variation entre 0 et 25 % d'enrichissement en ^{235}U , un contraste significatif qui permettrait d'obtenir des informations de discrimination si les incertitudes statistiques sur ces raies gamma et leurs ratios le permettent, ce qu'il conviendra de vérifier expérimentalement. Cette étude par simulation fait en effet abstraction des phénomènes d'empilement d'impulsions et de temps mort électronique qui peuvent s'avérer majeurs avec des colis aussi actifs que celui considéré, qui conduit à un taux de comptage total élevé par détecteur, estimé à $1,6 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$. De plus, l'étude montre que la localisation ainsi que la densité du colis ont une forte influence sur les limites de détection atteignables. D'où la nécessité d'accéder à ces informations a priori, comme mentionné dans la Section 1.2.1), avec d'autres techniques de caractérisation non-destructive comme l'imagerie X à haute énergie.

L'étude de ratios de raies de gamma retardés suivant la photofission est la plus prometteuse pour obtenir des informations de différenciation entre les actinides dans des colis bétonnés hétérogènes et volumineux, dans l'état actuel des recherches sur l'IPA. La méthode a été étudiée avec un mélange de deux isotopes mais est viable théoriquement pour plus d'actinides. Un prérequis à la discrimination est que les taux de production des produits de fission soient connus pour tous les isotopes du mélange d'actinides. Cela constitue une limitation à cette méthode pour le moment (voir Section 1.2.3.3),

et ce n'est pas la seule. Plus il y a d'actinides à différencier, plus il y a d'inconnues et plus il faut de ratios. Au vu de la complexité des spectres (*cf.* Figure 1.13), il peut être compliqué de trouver un nombre important de raies suffisamment proches en énergie. On peut néanmoins s'affranchir de cette condition, mais cela requiert une localisation des actinides pour corriger au mieux les effets de matrice sur les rayonnements gamma retardés sortant du colis et par suite les ratios de raies gamma utilisés pour la différenciation des actinides. Cette localisation est par ailleurs tout aussi importante pour la quantification de leur masse par photofission et une piste étudiée, en dehors de la tomographie de photofission, sera l'utilisation des spectres de rayonnements gamma retardés eux-mêmes, via l'exploitation des produits de fission multi-émetteurs gamma utilisés comme sondes d'épaisseur. Ceci fera l'objet d'une partie de cette thèse.

1.2.3 Limitations actuelles de la photofission

La détection de rayonnements gamma retardés de photofission est la technique qui a le plus de potentiel pour la caractérisation non-destructive de colis de déchets bétonnés hétérogènes et volumineux. Cependant, elle reste à un stade de développement industriel peu avancé et fait face à des limitations ayant une grande influence sur les incertitudes atteignables en terme de quantification et de différenciation des actinides.

1.2.3.1 Effets de matrice et de localisation

Le conditionnement des déchets radioactifs sous forme de colis permet de les manutentionner et surtout de confiner les radionucléides. Il consiste à placer les déchets dans un conteneur où ils peuvent éventuellement être incorporés dans un matériau d'enrobage ou de blocage [4]. Les déchets liquides et pulvérulents peuvent par exemple être placés dans une matrice en ciment, béton ou bitume. Les déchets solides peuvent être compactés ou non et bloqués par un liant hydraulique. Les matériaux utilisés pour les conteneurs sont principalement le béton et l'acier inoxydable. Les combinaisons possibles de matériaux sont vastes, particulièrement dans le cas des colis de déchets technologiques MA-VL de l'INB 56 du CEA à caractériser (voir Tableau 1.6). Il n'y a donc pas une solution unique pour caractériser tous ces types de colis, qui présentent des contenus variables. En particulier, le rayonnement interrogateur et les rayonnements détectés subissent des effets d'atténuation par les matériaux à l'intérieur du colis, appelés effets de matrice, qui dépendent notamment de :

- la densité du milieu et le numéro atomique des matériaux,
- la présence d'hétérogénéités ou de zones vides,
- la répartition de la masse d'actinides.

L'exploitation de l'IPA n'est donc pas envisageable seule, mais accompagnée de mesures d'imagerie, pour obtenir des détails sur la structure et la composition interne du colis, et de mesures permettant de localiser les actinides, comme par exemple la tomographie de photofission mentionnée dans la Section 1.2.1. À titre d'exemple, l'étude de faisabilité menée par Simon *et al.* [70] sur un colis de 870 L par simulation a montré des changements drastiques dans la limite de détection d'une masse d'uranium centrée dans le colis, en fonction de la densité du déchet. Une variation de densité de $0,5 \text{ g.cm}^{-3}$ à $2,5 \text{ g.cm}^{-3}$ induit une augmentation de la limite de détection d'un facteur 1000, passant d'environ 1 g à plus de 1 kg. Cela illustre la nécessité d'obtenir des informations sur la densité du colis avant d'entreprendre toute quantification de la matière. Des variations importantes selon la localisation de la matière nucléaire au centre ou en périphérie du colis sont montrées par cette même étude. Dans la position centrée, le spectre du faisceau interrogateur subit un durcissement. Plus de photons de haute énergie sont présents en proportion. Ces derniers sont moins sensibles aux effets d'autoprotection, c'est-à-dire à l'atténuation du rayonnement interrogateur au sein même de la matière nucléaire, souvent très dense. Ce durcissement du spectre du faisceau interrogateur permet en quelque sorte de compenser son atténuation par l'épaisseur de colis traversée. Cela souligne l'importance de la localisation des actinides.

En résumé, les effets de matrice sont un élément clé à considérer pour obtenir une quantification fiable de la matière nucléaire en présence, que ce soit pour estimer le taux de photofission en son sein ou l'atténuation des rayonnements gamma retardés à détecter. Ils sont aussi primordiaux dans le cadre de la différenciation entre les actinides, notamment si on souhaite exploiter des ratios de

raies éloignées en énergie, comme mentionné dans la Section 1.2.2.4. En effet, selon son énergie, un rayonnement gamma retardé ne sera pas atténué de la même façon dans le colis, ni détecté avec la même efficacité. Il convient donc de remonter à un nombre de gamma retardés d'énergie donnée émis par les produits de photofission le plus fidèle possible à la réalité en prenant en compte ces effets de matrice.

1.2.3.2 Signaux additionnels

1.2.3.2.1 Bruits de fond passif et actif

Le bruit de fond est essentiel à considérer car il a un impact direct sur la limite de détection. Il peut être séparé en deux catégories : le bruit de fond passif présent hors interrogation du colis et celui dit actif qui apparaît lors de l'irradiation.

Le bruit de fond passif est issu des émetteurs β/γ présents dans le colis, voire issus d'autres colis (ou sources de rayonnements) à proximité. Il doit être mesuré au préalable de l'irradiation, mais peut être estimé par simulation en se basant sur des données radiologiques moyennes existantes pour les différents types de déchets. Simon *et al.* [70] l'ont par exemple évalué pour un colis 870 L en simulant l'émission gamma des 6 isotopes les plus actifs, dont les prépondérants sont ^{137}Cs , $^{108\text{m}}\text{Ag}$ et ^{241}Am . Le ^{137}Cs avec sa raie à 661,7 keV domine le spectre en termes d'intensité, comme illustré sur le spectre à gauche de la Figure 1.15. Le bruit de fond passif est estimé à $1,5 \cdot 10^6$ coups. s^{-1} , cependant les rayonnements correspondants sont tous situés en dessous de 800 keV, limitant l'interférence avec les raies de gamma retardés utiles pour la quantification et la discrimination des actinides, voir Tableaux 1.9 et 1.10. Ce taux de comptage est néanmoins très élevé et pourrait conduire à la saturation du détecteur GeHP, ou a minima à de très fortes pertes de comptage par empilement d'impulsions et par temps mort électronique. Des solutions peuvent être envisagées pour le réduire, comme une collimation des détecteurs, l'augmentation de la distance entre le colis et les détecteurs ou l'utilisation d'écrans pouvant filtrer les gamma de basse énergie.

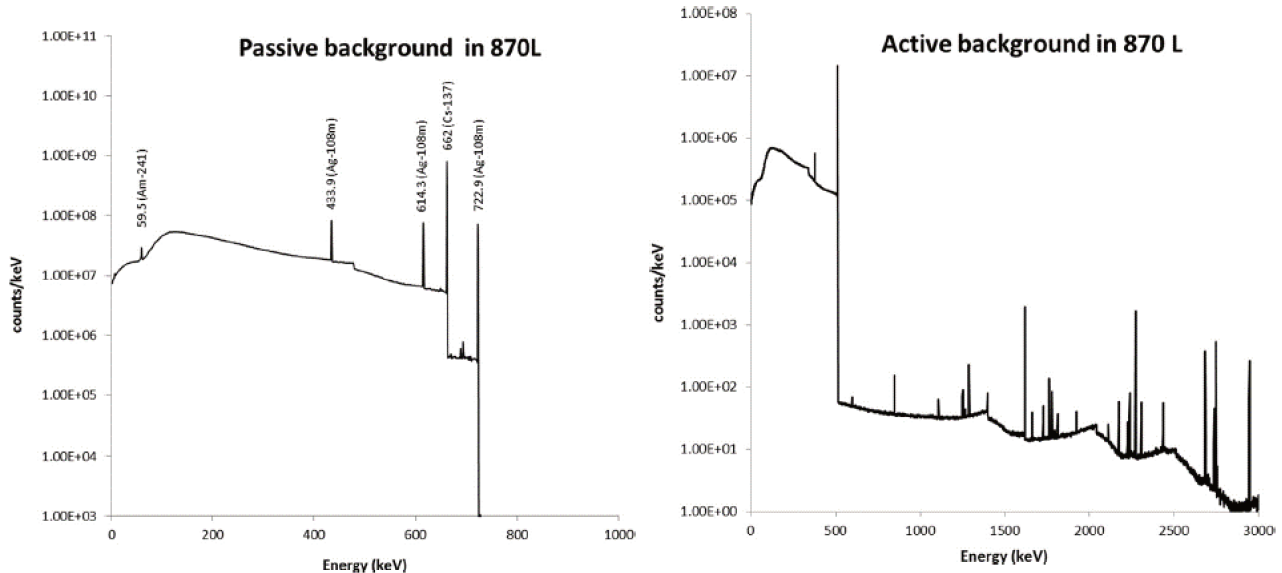


FIGURE 1.15 – Spectres de bruit de fond passif (à gauche) et actif (à droite) simulés dans le cas d'un colis 870 L par Simon *et al.* [70].

Le bruit de fond actif est constitué des gamma retardés émis par l'activation des matériaux non nucléaires durant l'irradiation. Les photons de *Bremsstrahlung*, ainsi que les photoneutrons produits par des photons de haute énergie au travers de réactions (γ, n) sur les matériaux non nucléaires, dont la cible de l'accélérateur (mentionné dans la Section 1.1.4.1.2), créent de l'activation. Les réactions d'activation principales suivantes sont à considérer dans les matériaux du colis : (γ, n) , (γ, p) , (n, p) , $(n, 2n)$, (n, α) , (n, γ) . Les sources de bruit de fond actif qui pourront être rencontrées dans un cas de colis réel 870 L ont été répertoriées par Simon *et al.* [70] en effectuant des simulations des taux de réaction dans les matériaux des différentes parties du colis. L'activité des radionucléides en est déduite, puis les

émissions gamma correspondantes sont simulées dans le colis. Le spectre à droite de la Figure 1.15 est ainsi obtenu. L'irradiation mène à la production d'émetteurs β^+ comme ^{13}N , ^{11}C et ^{15}O qui créent un important pic d'annihilation à 511 keV. L'estimation faite du taux de comptage du bruit de fond actif est $1,8 \cdot 10^4$ coups. s^{-1} , soit deux ordres de grandeur en dessous du bruit de fond passif. Malgré tout, de nombreuses raies sont présentes au-delà de 1,3 MeV et pourraient interférer avec les rayonnements gamma retardés utiles pour former des ratios.

1.2.3.2 Fissions neutroniques

Un signal constitué des rayonnements gamma retardés de fissions neutroniques peut également se superposer au signal issu de la photofission. Comme évoqué précédemment, des photoneutrons peuvent être produits par des réactions (γ, n) du faisceau sur la cible de conversion, dans le collimateur du LINAC, dans les matériaux du colis ou dans les matériaux environnants. Ces photoneutrons sont ensuite thermalisés dans le colis composé de béton et peuvent ainsi créer des fissions dans la matière fissile. Ces dernières pourraient être considérées comme du signal utile [29] mais l'estimation du flux de photoneutrons requiert une bonne connaissance des matériaux du colis. Ainsi, le signal issu des fissions neutroniques sera plutôt considéré comme un bruit de fond dans notre cas, puisqu'il n'est pas reproductible d'un colis à l'autre. Des neutrons produits dans la matière nucléaire par le biais de réactions (γ, n) ou $(\gamma, 2n)$ sont également présents, leur énergie seuil est reportée dans le Tableau 1.11 pour quelques actinides. Ces derniers, de même que les neutrons prompts produits lors de la photofission dans les actinides sont potentiellement une autre source de fission. Simon *et al.* [70] ont d'ailleurs évalué par simulation que la plupart des fissions "parasites" sont dues à des neutrons issus de la matière nucléaire elle-même, et non ceux produits dans la cible du LINAC et les matériaux non nucléaires du colis. Dans le cas d'un colis réel, il sera primordial d'évaluer au mieux la distribution spatiale des actinides afin d'étudier par simulation cette part de fissions dites parasites, mais qui en fait accroissent le signal utile, pour ne pas trop surestimer la quantité de masse fissile présente.

TABLEAU 1.11 – Énergie seuil des réactions (γ, n) et $(\gamma, 2n)$ pour quelques actinides [82].

Isotope	Énergie seuil (MeV)	
	(γ, n)	$(\gamma, 2n)$
^{235}U	5,3	12,14
^{238}U	6,2	11,28
^{238}Pu	7,0	12,86
^{239}Pu	5,7	12,65
^{241}Pu	5,2	11,78

1.2.3.3 Données nucléaires

Actuellement, les données nucléaires de photofission sont loin d'être complètes pour tous les actinides. Par exemple, peu de données sont disponibles concernant la photofission des isotopes du plutonium. Quand les données existent, elles sont parfois sujettes à des incertitudes conséquentes qui se répercutent directement sur les valeurs à mesurer.

La première donnée photonucléaire d'intérêt pour la quantification des actinides est leur section efficace de photofission. Elle permet, via une convolution avec le flux de photons interrogateurs au niveau de la matière nucléaire et la prise en compte d'effets d'autoprotection, d'évaluer le taux de photofission au sein des actinides. Les sections efficaces de photofission ont été mesurées pour la plupart des actinides d'intérêt. On peut notamment se référer à la Figure 1.8 pour visualiser celles de ^{235}U , ^{238}U et du ^{239}Pu . Les actinides les plus étudiés en termes de section efficace sont ^{235}U depuis la fin des années 1940 [83] et ^{238}U depuis le milieu des années 1950 [84]. De nos jours, de nombreuses données de section efficace existent pour ces deux actinides qui ont été la plupart du temps obtenues en utilisant un faisceau de *Bremsstrahlung*. Un travail récent de Krishichayan *et al.* [85] déterminant le ratio des sections efficaces $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ avec des photons mono-énergétiques a cependant mis en évidence des différences parfois conséquentes entre des données expérimentales publiées au préalable.

Néanmoins, il est bon de mentionner que la comparaison de ces travaux récents avec les valeurs de la base de données ENDF B-VII.1 semblent en bon accord. Une étude complémentaire a été faite par cette même équipe [86] pour mesurer les ratios de sections efficaces du ^{239}Pu et de ^{235}U ou de ^{238}U par cette même méthode. Encore une fois, elle met en lumière des différences entre les données expérimentales qui étaient précédemment disponibles dans la littérature.

Les taux de production des produits de photofission sont aussi des données nucléaires indispensables pour remonter à la quantité d'actinides à partir des rayonnements gamma retardés, ainsi que pour leur différenciation, comme mentionné dans la Section 1.2.2.1. Pour séparer les contributions des noyaux fissiles et fertiles et les quantifier individuellement, il faut donc connaître la distribution en masse des rendements des produits de photofission pour les actinides que l'on cherche à différencier. Les données de rendements de photofission sont nombreuses pour ^{238}U [44, 47, 87-94] et quelques données existent pour ^{235}U [86, 90], le ^{239}Pu [47, 93, 95, 96] et le ^{232}Th [88, 89, 94]. Tout comme pour les sections efficaces, les données montrent parfois des écarts significatifs entre les publications. Des exemples de rendements de produits de photofission de ^{238}U issus de différentes publications sont reportés dans le Tableau 1.12, avec des variations importantes comme pour le ^{99}Mo dont le taux de production varie de 4,8 % à 6,57 %, soit un écart de 37 %. Ces données ont été mesurées avec des sources de photons parfois très différentes, ce qui peut constituer la raison principale de ces écarts.

Au cours de cette thèse, les rendements de photofission cumulatifs seront donc évalués pour ^{235}U , ^{238}U et le ^{239}Pu , puis comparés aux données actuellement existantes dans la littérature pour valider notre approche de mesure. Dans l'avenir, les taux de production de produits de photofission devront être mesurés pour tous les actinides potentiellement présents dans les colis de déchets radioactifs devant faire l'objet d'une caractérisation radiologique.

TABLEAU 1.12 – Exemples de rendements de production cumulatifs (en %) pour les produits de photofission de ^{238}U issus de la littérature.

PF	Référence					
	[87]	[90]	[88]	[89]	[91]	[47]
^{88}Kr	2,4	2,52	2,771	2,765	1,99	2,92
^{89}Rb	3,023	3,297	-	3,421	3,54	-
^{99}Mo	5,685	-	4,835	4,754	5,83	6,57
^{101}Mo	7,919	6,78	-	7,562	5,82	-
^{135}I	5,646	6,66	5,882	6,548	6,33	6,13
^{138}Cs	6,9	-	7,998	6,44	5,77	-
^{142}Ba	4,764	4,66	-	4,675	4,87	-
^{142}La	4,907	5,01	5,263	4,884	4,87	5,58

1.3 Conclusion et positionnement de la thèse

Au travers de ce premier chapitre ont été présentés les différents types de mesure non-destructive disponibles pour caractériser les colis de déchets radioactifs. Les méthodes passives sont souvent insuffisantes et l'utilisation de méthodes actives s'avère nécessaire, en particulier pour l'étude de colis volumineux. L'INA est une méthode très sensible, mais également très dépendante du contenu en hydrogène des colis, ce qui rend son utilisation sur des colis bétonnés volumineux impossible. C'est dans ce contexte que l'IPA montre son intérêt puisqu'elle fait appel à des photons interrogateurs de haute énergie, peu sensibles aux variabilités de la teneur en éléments légers dans les colis.

La thèse introduite par le biais de ce chapitre s'inscrit dans un programme sur la gestion des déchets entreposés dans l'INB 56 du CEA Cadarache. La faisabilité de la caractérisation de colis de type MAVL par IPA est étudiée, d'une part en vue de leur entreposage dans l'installation CEDRA, d'autre part en vue de leur stockage définitif dans l'installation CIGEO. La méthode étudiée dans ce travail de thèse est l'IPA avec détection de rayonnements gamma retardés. Celle-ci est pour l'instant la seule qui fournisse un signal mesurable dû à la matière nucléaire dans le cas de colis bétonnés hétérogènes et volumineux.

Cependant, en l'état de développement actuel, l'IPA ne permet pas de répondre au besoin de quantification précise de la masse fissile seule. Des études doivent être entreprises pour réduire les incertitudes, notamment en obtenant au préalable des informations sur la composition interne des colis et la localisation de la matière nucléaire pour corriger au mieux les effets de matrice. Ces informations sont également nécessaires pour la différenciation des actinides, qui pourrait de plus être affectée par le manque de données nucléaires concernant certains actinides. Il est important de mentionner que la discrimination entre les actinides est le challenge principal de l'utilisation de cette technique. Sans cela, seule une masse globale d'actinide sera fournie, et aucune information précise sur la masse fissile ou l'activité α ne pourra être déduite, ces grandeurs étant primordiales pour la gestion de ces colis de déchets : transport, entreposage et exutoire final (stockage en surface ou en profondeur).

Le chapitre suivant sera dédié à la caractérisation du faisceau de photons interrogateurs ainsi que de sa composante photoneutronique à l'aide d'une méthode exploitant respectivement l'activation photonique ou neutronique de cibles. Le troisième chapitre portera sur la mesure des taux de production des produits de photofission de l' ^{235}U , l' ^{238}U et du ^{239}Pu . Le quatrième chapitre sera focalisé sur le développement d'une méthode de localisation des actinides et sur la correction des effets de matrice pour la discrimination et la quantification des actinides. Enfin, le dernier chapitre traitera de l'estimation des performances de détection et des limitations de la méthode sur les colis 870 L.

Chapitre 2

Caractérisation du faisceau du LINAC Saturne et du bruit de fond associé

2.1 Description de l'accélérateur linéaire d'électrons (LINAC) et des moyens de caractérisation du faisceau

2.1.1 Présentation de la cellule CINPHONIE et du LINAC Saturne

Les mesures ont été réalisées dans la cellule CINPHONIE (Cellule d'Interrogation Photonique et Neutronique) de l'INB 156 au CEA de Cadarache [2] dont un plan et une vue d'ensemble sont présentés respectivement sur la Figure 2.1 et la Figure 2.2.

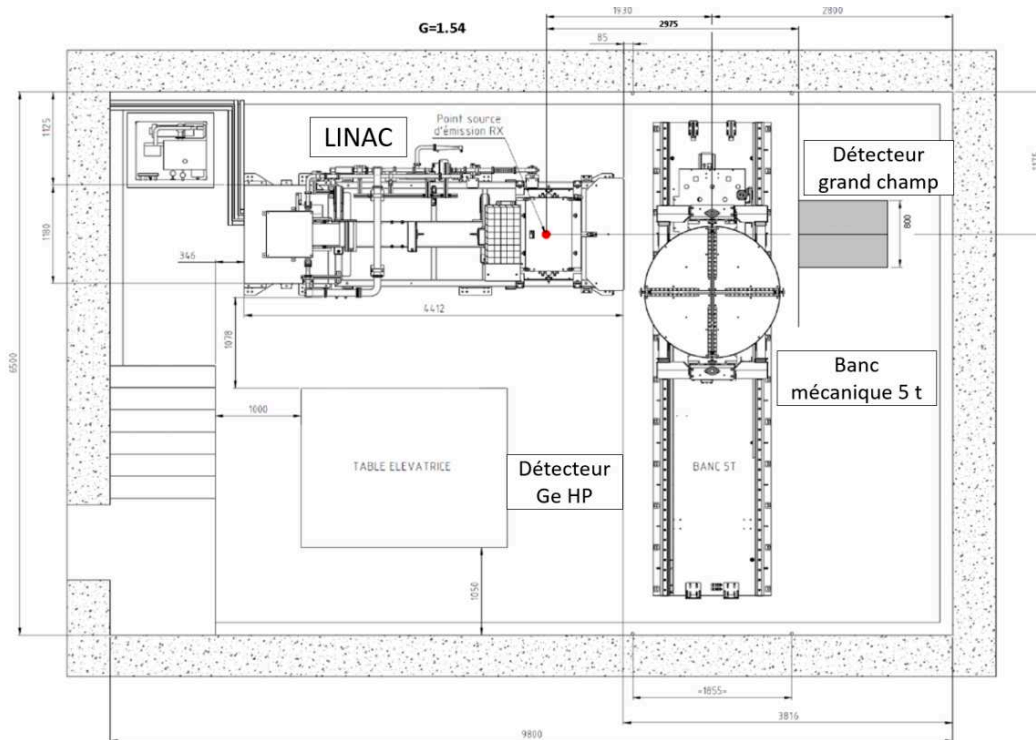


FIGURE 2.1 – Plan de la cellule CINPHONIE

La méthode étudiée exploite les rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission ayant des périodes radioactives s'étendant de quelques dizaines de secondes à plusieurs dizaines d'heures. Pour cela, nous effectuons des mesures de spectrométrie gamma avec un détecteur Ge HP en post-irradiation (voir Chapitre 1, Tableau 1.4). Les expériences se déroulent en trois étapes distinctes :

- une période d'irradiation de plusieurs heures où l'objet à interroger est placé sur le banc mécanique porte-colis (jusqu'à 5 tonnes) dans le faisceau X du LINAC ;
- une période de refroidissement pendant laquelle le banc mécanique peut réaliser des translations horizontales et verticales, voire une rotation afin d'aller placer l'objet interrogé devant le détecteur Ge HP situé à l'écart du faisceau du LINAC pour le protéger. Ces mouvements sont programmés sur un logiciel de pilotage et la période de refroidissement qui est associée aux mouvements dure quelques dizaines de secondes ;

- une période de comptage lors de laquelle les rayonnements gamma retardés sont mesurés par une chaîne de spectrométrie gamma Ge HP. Cette période dure de quelques heures à quelques jours en fonction de la période des produits de photofission que l'on cherche à mesurer.

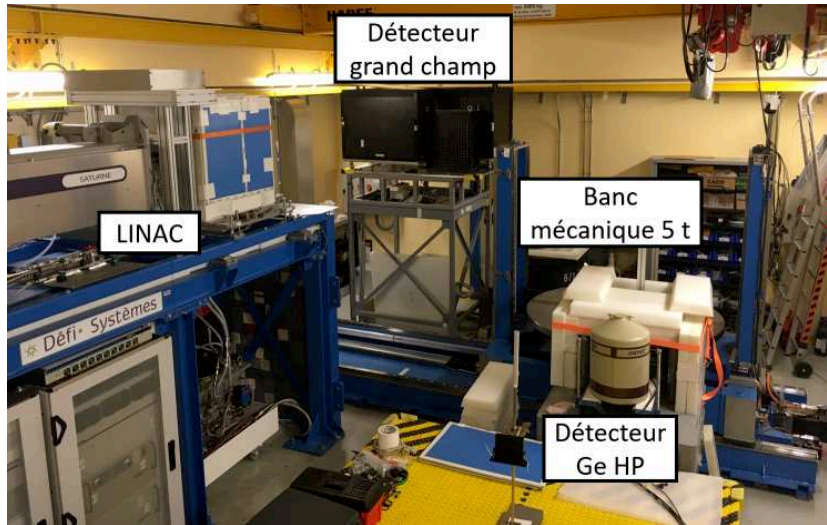


FIGURE 2.2 – Vue d'ensemble de la cellule CINPHONIE

Pendant les phases d'irradiation et de comptage, les colis peuvent être en rotation continue (colis homogènes), pas à pas (mesures segmentées) ou encore en position statique (mesure d'échantillons ou de points chauds repérés dans un colis).

Le faisceau de photons interrogateurs est produit avec un LINAC Saturne. Cet accélérateur était initialement utilisé pour des traitements médicaux et a été installé dans la cellule CINPHONIE en 2018. Il remplace un LINAC de 9 MeV et de débit de dose 23 Gy/min à 1 m (Mini-Linatron Varian) [97], utilisé à l'époque pour l'imagerie. L'installation du Saturne a permis l'enclenchement du programme d'études expérimentales sur l'Interrogation Photonique Active (IPA). Des travaux de mise à niveau de l'accélérateur Saturne ont été nécessaires pour atteindre de hautes énergies et un débit de dose photonique suffisant pour l'examen de colis de déchets radioactifs denses et volumineux. Actuellement, le LINAC comporte plusieurs points de fonctionnement et permet d'accélérer les électrons jusqu'à 21 MeV et d'atteindre un débit de dose photonique d'environ 60 Gy/min à 1 m de la cible de *Bremsstrahlung*, dans l'axe du faisceau.

Le LINAC délivre des impulsions de quelques μs à une fréquence pouvant atteindre 200 Hz, avec un courant crête maximum de 100 mA. Il comporte deux cavités accélératrices d'électrons. Ces derniers atteignent une cible en tungstène de 5 mm d'épaisseur et 8 mm de diamètre et une part de leur énergie cinétique est convertie en rayonnement de freinage (ou *Bremsstrahlung*). L'énergie du spectre de photons résultant s'étend de 0 MeV à l'énergie maximale des électrons, voir Figure 1.9. Un collimateur en plomb de 20 cm d'épaisseur muni d'une fente horizontale est situé au-delà de la cible du LINAC afin de focaliser l'interrogation photonique sur des échantillons ou une tranche de colis de déchets radioactifs. Les dimensions de l'ouverture du collimateur sont reportées sur la Figure 2.3.

La cible du LINAC et le collimateur étant composés de matériaux de numéro atomique élevé, respectivement le tungstène ($Z = 74$) et le plomb ($Z = 82$), ils sont sujets à la production de photoneutrons via des réactions (γ, xn) avec des photons produits par le LINAC. Les énergies seuils de ces réactions pour les deux matériaux sont données dans le Tableau 2.1.

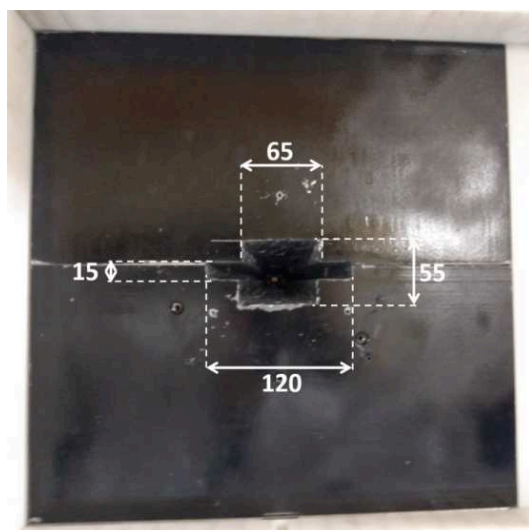


FIGURE 2.3 – Dimensions (en mm) de l'ouverture du collimateur en plomb.

TABLEAU 2.1 – Énergies seuils des réactions de production de photoneutrons pour le cadmium, le tungstène et le plomb [98].

Matériau	Isotope	Abondance naturelle (%)	$E_{\text{seuil}}(\gamma, n)$ (MeV)	$E_{\text{seuil}}(\gamma, 2n)$ (MeV)
Cadmium	^{106}Cd	1,25	10,87	19,30
	^{108}Cd	0,89	10,33	18,26
	^{110}Cd	12,49	9,92	17,24
	^{111}Cd	12,80	6,97	16,89
	^{112}Cd	24,13	9,40	16,37
	^{113}Cd	12,22	6,54	15,94
	^{114}Cd	28,73	9,04	15,58
	^{116}Cd	7,49	8,70	14,84
Tungstène	^{180}W	0,12	8,41	15,35
	^{182}W	26,30	8,07	14,75
	^{183}W	14,28	6,19	14,26
	^{184}W	30,70	7,41	13,60
	^{186}W	28,60	7,19	12,95
Plomb	^{204}Pb	1,40	<i>Pas de donnée disponible</i>	
	^{206}Pb	24,10	8,09	14,82
	^{207}Pb	22,10	6,74	14,83
	^{208}Pb	52,40	7,37	14,11

Pour étudier l'IPA, il convient de minimiser le nombre de photoneutrons incidents sur les objets interrogés pour limiter les fissions neutroniques parasites. Un blindage neutronique autour du collimateur est mis en place dans ce but, visible sur l'avant de la Figure 2.4 et plus en détail en Figure 2.5 puis Figure 2.6. Il est composé de blocs de 20 cm d'épaisseur de polyéthylène boré (noté PEB, dont 5 % de son poids est du trioxyde de bore B_2O_3) et de polyéthylène simple (noté PE). Ces blocs thermalisent les photoneutrons initialement rapides et le bore absorbe une partie des neutrons thermiques ou épithermiques. Une couche de cadmium de 2 mm d'épaisseur est placée sur la face avant du blindage en polyéthylène afin d'absorber encore davantage de neutrons thermiques qui peuvent induire beaucoup de fissions dans des échantillons d' ^{235}U et de ^{239}Pu . En effet, la section efficace de fission par des neutrons thermiques est particulièrement élevée pour ces isotopes fissiles, à savoir 590 b pour l' ^{235}U et 750 b pour le ^{239}Pu . La contrepartie de l'ajout de cadmium est la production de nouveaux photoneutrons par les photons de haute énergie du LINAC (voir les énergies seuil dans le Tableau 2.1). Cependant, ces photoneutrons sont rapides et la section efficace de fission par des neutrons rapides est de l'ordre du barn, deux décades en dessous de celle par des neutrons thermiques.

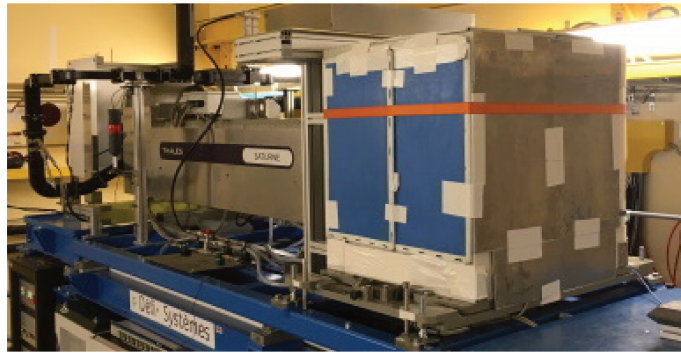


FIGURE 2.4 – Vue du LINAC et de son blindage neutronique.

Un aperçu du montage du blindage en polyéthylène est montré sur la Figure 2.5 pour visualiser sa structure autour du collimateur.

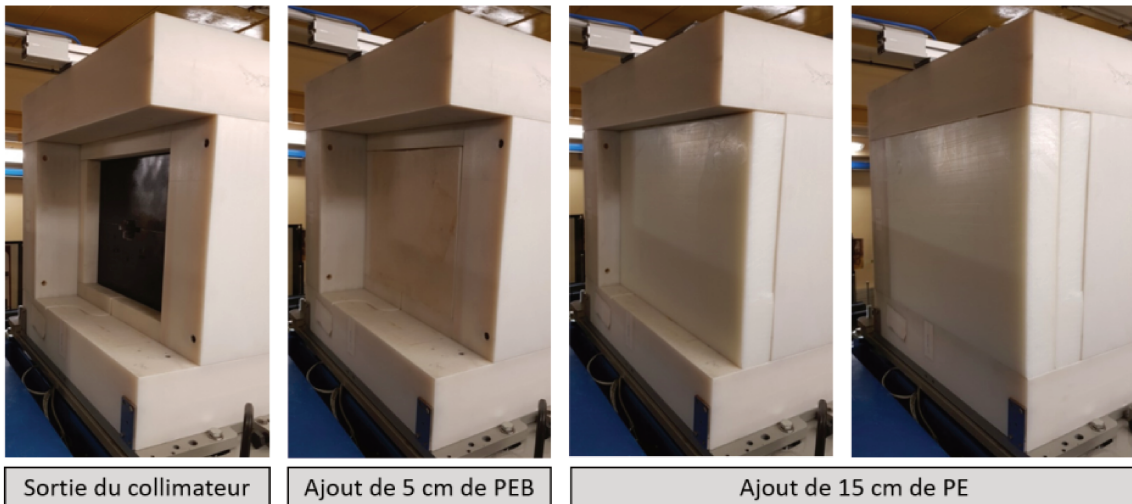


FIGURE 2.5 – Structure du blindage neutronique en polyéthylène.

La visualisation du modèle MCNP du LINAC, de son collimateur et du blindage neutronique, utilisé tout au long de cette thèse, est montrée sur la Figure 2.6.

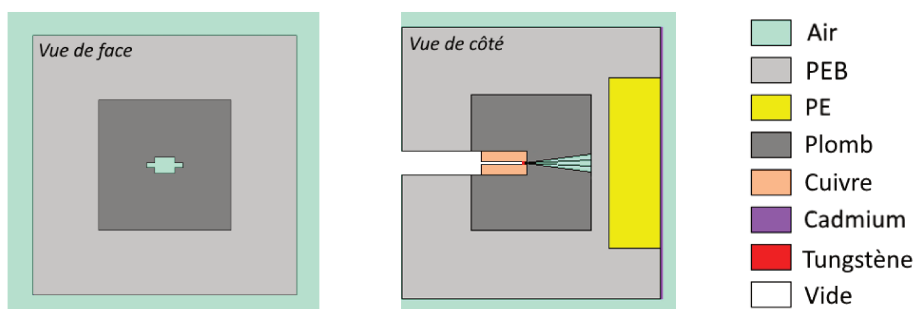


FIGURE 2.6 – Modèle MCNP du LINAC, du collimateur et du blindage neutronique.

2.1.2 Caractérisation du faisceau par activation photonique et neutronique

2.1.2.1 Besoin de caractérisation du faisceau

Dans le cadre de l'IPA, la connaissance du spectre en énergie des photons de *Bremsstrahlung* est primordiale, en particulier de 6 MeV (seuil des réactions de photofission) jusqu'à l'énergie de fin de faisceau, qui correspond à l'énergie maximale des électrons. En effet, comme l'illustre la Figure 2.7, le spectre de *Bremsstrahlung* subit des variations conséquentes à haute énergie en fonction de l'énergie des électrons du LINAC. Or, dans la zone d'énergie située entre 10 et 16 MeV, les sections efficaces de photofission varient rapidement. Le but de cette thèse étant de contribuer au développement d'une

méthode de quantification des actinides, il est donc nécessaire de pouvoir estimer en absolu leur taux de photofission. Une mauvaise connaissance du spectre en énergie des photons de *Bremsstrahlung* et du flux de photons peuvent entraîner une incertitude importante sur l'évaluation du taux de photofission induit, et donc de la masse d'actinides déduite des mesures. À titre d'exemple, le taux de photofission par gramme d' ^{235}U et un spectre de *Bremsstrahlung* pour des électrons monoénergétiques de 14 MeV est 3 fois supérieur à celui correspondant à des électrons de 12 MeV, pour un nombre d'électrons incidents identique. Le LINAC décrit dans la section précédente a subi plusieurs mises à niveau depuis sa mise en service en 2019. Certains composants ont été changés pour atteindre les énergies d'électrons ainsi que les débits de dose assez élevés pour pratiquer de l'imagerie ou de l'IPA sur des objets denses et volumineux. Cela a engendré la modification des points de fonctionnement du LINAC à plusieurs reprises. La distribution en énergie des électrons accélérés, et donc le spectre en énergie des photons de *Bremsstrahlung*, ne sont a priori pas connus. Il en est de même pour le flux de photons de *Bremsstrahlung*. C'est pourquoi il est primordial de développer une méthode de caractérisation fine du faisceau de photons délivré par le LINAC.

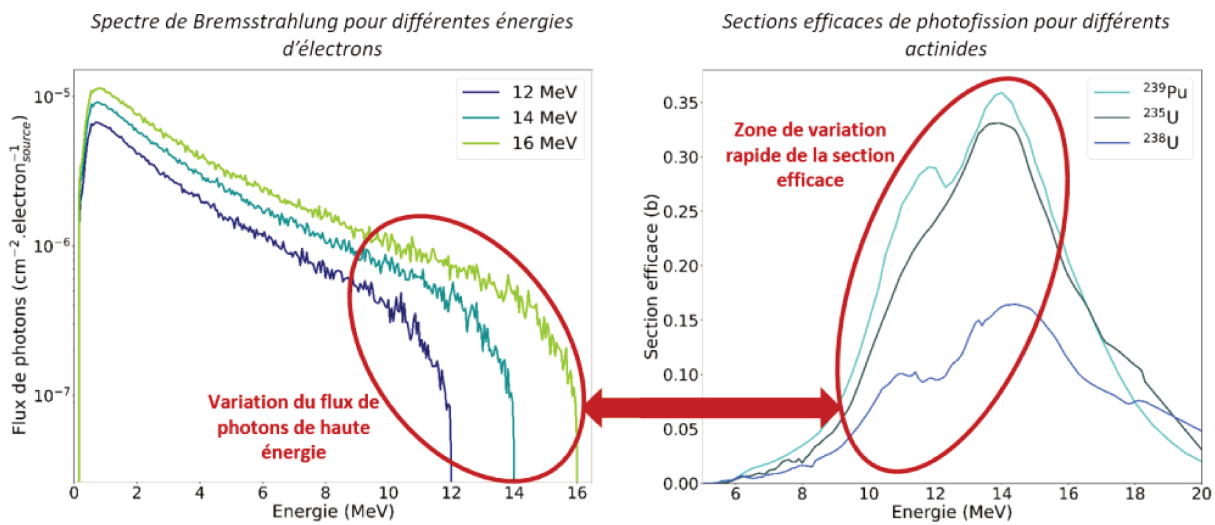


FIGURE 2.7 – Illustration du besoin de la caractérisation de la distribution en énergie des électrons du LINAC par rapport à la variation de la section efficace de photofission pour des photons de haute énergie.

Au même titre que le faisceau de photons de *Bremsstrahlung*, le flux de photoneutrons produit par le dispositif complet d'irradiation (LINAC, collimateur et blindage neutronique) doit être caractérisé. En effet, les neutrons produits peuvent créer des fissions dans les actinides, ce qui devra être considéré lors du calcul des taux de production des produits de photofission.

2.1.2.2 Description du dispositif expérimental pour la caractérisation du faisceau

Afin de réaliser la caractérisation complète des faisceaux de photons et de neutrons produits par le LINAC, une méthode basée sur l'activation photonique ou neutronique de matériaux cibles a été développée. Elle consiste à placer des matériaux de composition et de géométrie connue dans le flux du LINAC et à mesurer le spectre de rayonnements gamma émis par les produits d'activation formés suite à l'irradiation avec un détecteur à haute-résolution GeHP. Deux campagnes expérimentales ont été réalisées, en octobre 2019 et en février 2021. Les points de fonctionnement étant différents entre ces deux périodes, la caractérisation du faisceau a été effectuée à chaque fois. Les paramètres expérimentaux de ces deux campagnes de mesures sont décrits ci-après.

2.1.2.2.1 Campagne expérimentale de 2019

La liste des matériaux irradiés pour la caractérisation du faisceau ainsi que les caractéristiques des mesures lors de la campagne de 2019 sont données dans le Tableau 2.2. Les matériaux non-nucléaires utilisés sont à l'origine issus d'un Spectromètre Neutron à Activation [99] « SNAC 22 » développé pour la dosimétrie en cas d'accident de criticité [100]. Cet ensemble de pastilles est montré sur la Figure 2.8. Les matériaux nucléaires utilisés en 2019 sont, d'une part, un lingot massif d'uranium appauvri (UA) contenant 99,7 % d'²³⁸U, et d'autre part 4 plaquettes d'uranium hautement enrichi (UHE) contenant 93 % d'²³⁵U et moins d'un gramme d'uranium au total (les quantités précises ne peuvent pas être communiquées). Ces plaquettes contiennent un cœur composé de barrettes d'UHE séparées par des entretoises en Zircaloy2, l'ensemble étant situé entre deux couches minces de Zircaloy2. Elles sont utilisées pour la caractérisation du faisceau du LINAC pour l'activation du zirconium qu'elles contiennent.

TABLEAU 2.2 – Matériaux irradiés pour la caractérisation des faisceaux de photons et neutrons pendant la campagne expérimentale de 2019.

Matériaux non nucléaires					
Matériau	Masse (g)	Diamètre (mm)	Épaisseur (mm)	Activation photonique	Activation neutronique
Or	0,045	5	0,05	X	X
Indium	2 × 2,711	22	1		X
Cuivre	1,731	22	0,5		X
Nickel	10,03	22	3	X	
Magnésium	6,599	22	10		X
Échantillons d'actinides					
Matériau	Masse*	Épaisseur		Activation photonique	Activation neutronique
Uranium appauvri	100 g < m < 1 kg	10 mm		X	
Zirconium (armatures de l'échantillon d'uranium hautement enrichi)	17,61 g	< 1 mm		X	

*La masse d'actinides dans les échantillons ne peut être donnée précisément pour des raisons de confidentialité.

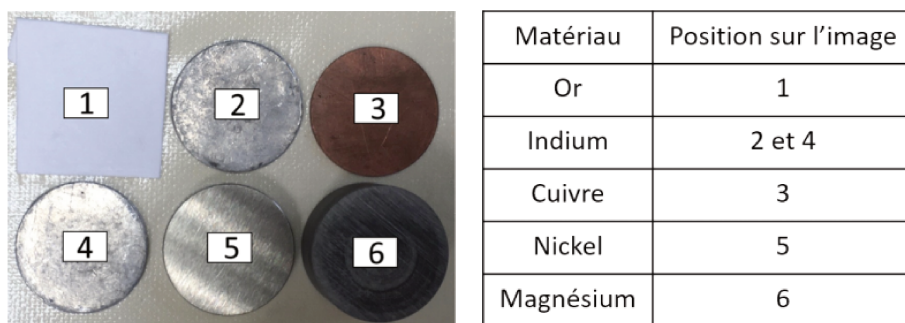


FIGURE 2.8 – Ensemble de pastilles SNAC 22 irradiées pour les expériences de 2019.

Les rayonnements gamma émis par les échantillons d'actinides sont mesurés dans la cellule CIN-PHONIE tandis que ceux émis par les matériaux non nucléaires sont mesurés dans un spectromètre bas bruit de fond situé hors de la cellule d'irradiation. Les caractéristiques des détecteurs Ge HP utilisés et les configurations temporelles de l'irradiation et de la mesure sont données dans le Tableau 2.3. Les Figures 2.9 et 2.10 donnent respectivement un aperçu du support d'irradiation et de la configuration de détection pour les pastilles SNAC lors de la campagne de 2019.

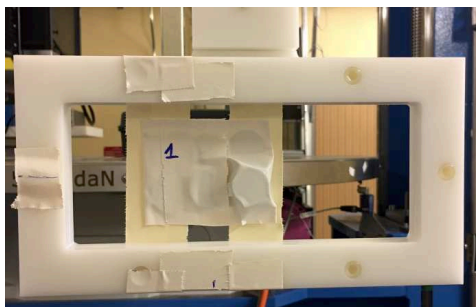


FIGURE 2.9 – Support d'irradiation pour les pastilles SNAC en 2019.



FIGURE 2.10 – Configuration de détection dans le dispositif à bas bruit de fond pour les pastilles SNAC en 2019.

TABLEAU 2.3 – Configurations expérimentales d'irradiation et de mesure des matériaux utilisés pour la caractérisation des faisceaux de photons et de neutrons lors de la campagne de 2019.

Matériaux	f (Hz)	Temps d'irradiation	Temps de refroidissement	Temps de mesure	Distance LINAC-échantillon	Distance échantillon-détecteur	Détecteur Ge HP	Chaîne de spectrométrie
Matériaux non nucléaires								
Pastilles	100	1 h	40 min	43 h	45 cm	5,5 cm	- BeGe 2020 (MIRION/CANBERRA) - Surf. 20 cm ² , ép. 2 cm - Efficacité relative 9 % - Résolution 1,75 keV (FWHM) à 1332,5 keV	Genie2000 + DSP9660 (MIRION/CANBERRA)
Échantillons d'actinides								
Uranium appauvri	10	2 h	30 s	67 h	44 cm	20 cm	- GR3018 (MIRION/CANBERRA) - Type n coaxial - Efficacité relative 30 % - Résolution 1,8 keV (FWHM) à 1332,5 keV	- Genie2000 + LYNX (analyseur multicanaux) en mode 32k canaux (MIRION/CANBERRA)
Zirconium	100	2 h	30 s	22 h	46 cm	19 cm		

2.1.2.2.2 Campagne expérimentale de 2021

Les matériaux activés lors de la campagne de 2021 sont listés dans le Tableau 2.4. Les pastilles utilisées en 2021 sont montrées sur la Figure 2.11. Dans cette nouvelle campagne, nous avons choisi de remplacer la pastille de cuivre initialement utilisée pour l’analyse par activation neutronique par une pastille de zinc utilisée pour l’analyse par activation photonique. Concernant ces expériences de caractérisation, le même échantillon d’UA et une unique plaquette plus massive d’UHE à 93 % contenant un cœur fissile logé entre deux couches de Zircaloy2 sont utilisés.

TABLEAU 2.4 – Matériaux irradiés pour la caractérisation des faisceaux de photons et neutrons pendant la campagne expérimentale de 2021.

Matériaux non nucléaires					
Matériau	Masse (g)	Diamètre (mm)	Épaisseur (mm)	Activation photonique	Activation neutronique
Or	0,045	5	0,05	X	X
Indium	2 × 2,711	22	1		X
Nickel	10,03	22	3	X	
Magnésium	6,599	22	10		X
Zinc	2,70	19	1,33	X	
Échantillons d’actinides					
Matériau	Masse*	Épaisseur		Activation photonique	Activation neutronique
Uranium appauvri	100 g < m < 1 kg	10 mm		X	
Zirconium (armatures de l’échantillon d’uranium hautement enrichi)	4,78 g	< 1 mm		X	

*La masse d’actinides dans les échantillons ne peut être donnée précisément pour des raisons de confidentialité.

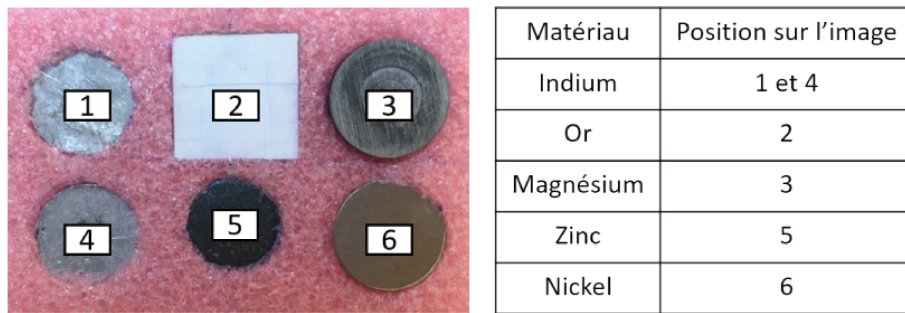


FIGURE 2.11 – Ensemble de pastilles irradiées pour les expériences de 2021.

Les caractéristiques des détecteurs Ge HP utilisés pour mesurer les rayonnements gamma émis par les produits d’activation et les configurations temporelles de l’irradiation et de la mesure sont données dans le Tableau 2.5.

TABLEAU 2.5 – Configurations expérimentales d'irradiation et de mesure des matériaux utilisés pour la caractérisation des faisceaux de photons et de neutrons lors de la campagne de 2021.

Matériaux	f (Hz)	Temps d'irradiation	Temps de refroidissement	Temps de mesure	Distance LINAC-échantillon	Distance échantillon-détecteur	Détecteur Ge HP	Chaîne de spectrométrie
Matériaux non nucléaires								
Pastilles	200	1 h	6,5 min	145 h	88 cm	10 cm	- BeGe 2020 (MIRION/CANBERRA) - Surf. 20 cm ² , ép. 2 cm - Efficacité relative 9 % - Résolution 1,75 keV (FWHM) à 1332,5 keV	Genie2000 + DSP9660 (MIRION/CANBERRA)
Échantillons d'actinides								
Uranium appauvri	200	2 h	45 s	42 h	102 cm	70 cm	- GMX50-83-1-141 PL (ORTEC) - Type n coaxial - Efficacité relative 50 % - Résolution 2,0 keV (FWHM) à 1332,5 keV	- Genie2000 + LYNX (analyseur multicanaux) en mode 16k canaux (MIRION/CANBERRA)
Zirconium	200	2 h	42 s	24 h	102,7 cm	70,7 cm		

Les Figures 2.12 et 2.13 donnent respectivement un aperçu du support d'irradiation et de la configuration de détection pour les pastilles SNAC lors de la campagne de 2021.



FIGURE 2.12 – Support d'irradiation pour les pastilles SNAC en 2021.

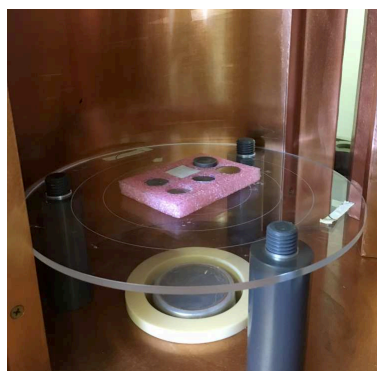


FIGURE 2.13 – Configuration de détection dans le dispositif à bas bruit de fond pour les pastilles en 2021.

Le LINAC a subi une mise à niveau importante entre les campagnes expérimentales de 2019 et de 2021, ce qui a amené le débit de dose à être multiplié par un facteur 10. De ce fait, les échantillons d'actinides irradiés en 2021 ont subi un nombre de réactions de photofission et d'activation plus élevé qu'en 2019. Par conséquent, le nombre de gamma émis en post-irradiation par les produits de photofission et d'activation était nettement supérieur. Afin de limiter le taux de comptage, et donc

le temps mort de la chaîne de spectrométrie gamma, nous avons placé un écran en polyéthylène de 7,28 cm entre le détecteur Ge HP et les échantillons d'actinides irradiés dans CINPHONIE.

2.1.2.3 Spectres des rayonnements gamma issus des produits d'activation

2.1.2.3.1 Caractéristiques des produits d'activation formés

Les caractéristiques des produits d'activation formés pendant l'irradiation ainsi que les rayonnements gamma observés sont listés dans le Tableau 2.6.

TABLEAU 2.6 – Produits d'activation d'intérêt formés et raies gamma observées.

Matériau irradié	Isotope activé	Abondance dans le matériau (%)	Type de réaction	Produit d'activation	T _{1/2}	Énergie gamma (keV)	Intensité (%)
Or	¹⁹⁷ Au	100	(γ,n) (n,γ)	¹⁹⁶ Au	6,2 j	355,73	86,95
				¹⁹⁸ Au	2,7 j	411,80	95,62
Indium	¹¹⁵ In	95,7	(n,γ)	^{116m} In	54,6 min	1293,54	84,70
						1097,30	57,60
						416,90	27,95
						2112,30	15,25
						818,70	11,60
1508,10	10,42						
Cuivre	⁶³ Cu	69,2	(n,γ)	⁶⁴ Cu	12,7 h	511,00	35,03
Nickel	⁵⁸ Ni	68,1	(γ,n)	⁵⁷ Ni	1,5 j	1377,62	81,20
						127,16	16,00
Magnésium	²⁴ Mg	79,0	(n,p)	²⁴ Na	14,9 h	1368,63 2754,05	99,99 99,86
Zinc	⁶⁴ Zn	48,2	(γ,n)	⁶³ Zn	38,3 min	669,93	8,19
Uranium appauvri	²³⁸ U	99,7	(γ,n)	²³⁷ U	6,7 j	208,00	21,30
Zirconium	⁹⁰ Zr	51,4	(γ,n)	^{89m} Zr	250,8 s	587,80	89,10
				⁸⁹ Zr	3,3 j	-	-
				^{89m} Y	15,7 s	908,96	99,16

Les spectres de rayonnements gamma émis par les produits d'activation sont détaillés dans les deux sections suivantes.

2.1.2.3.2 Campagne expérimentale de 2019

La Figure 2.14 présente les raies gamma émises par les produits d'activation formés dans les pastilles de matériaux non nucléaires. Les Figures 2.15 et 2.16 correspondent aux spectres mesurés suite à l'irradiation des échantillons d'UA et d'UHE. On y voit apparaître respectivement les rayonnements gamma émis par l'²³⁷U et par les produits d'activation du ⁹⁰Zr, accompagnés de nombreux gamma issus des produits de photofission.

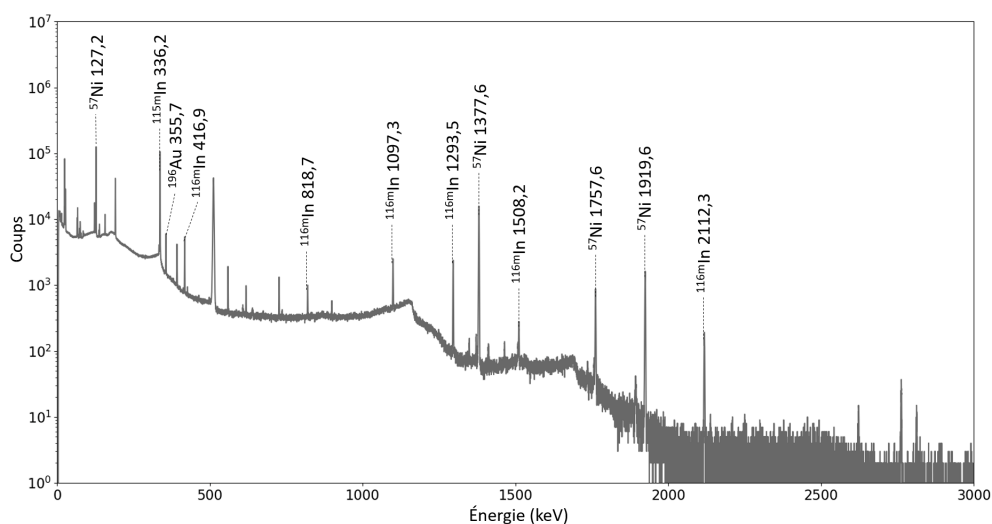


FIGURE 2.14 – Spectre de rayonnements gamma d'activation pour les pastilles de matériaux non-nucléaires irradiés en 2019.

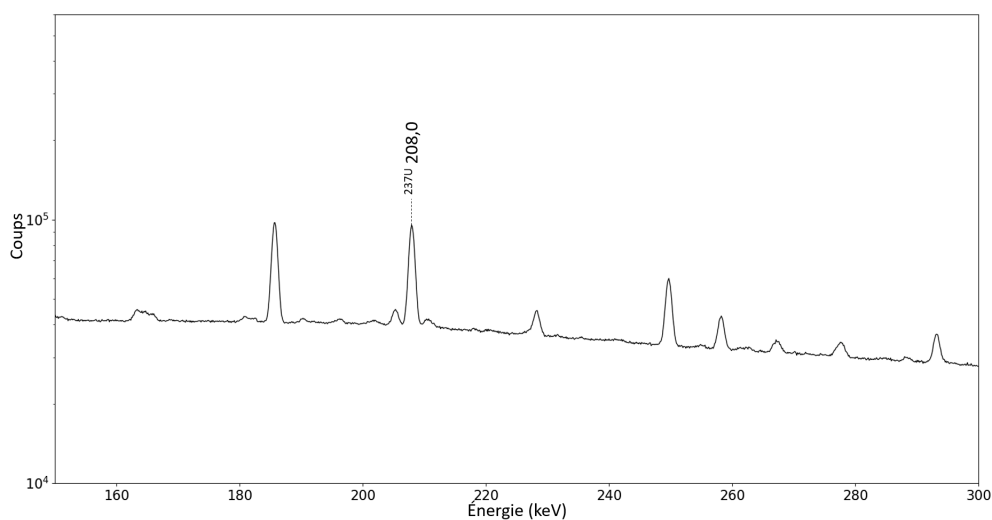


FIGURE 2.15 – Raie gamma émise par l' ^{237}U formé par l'activation de l' ^{238}U pour la campagne de 2019.

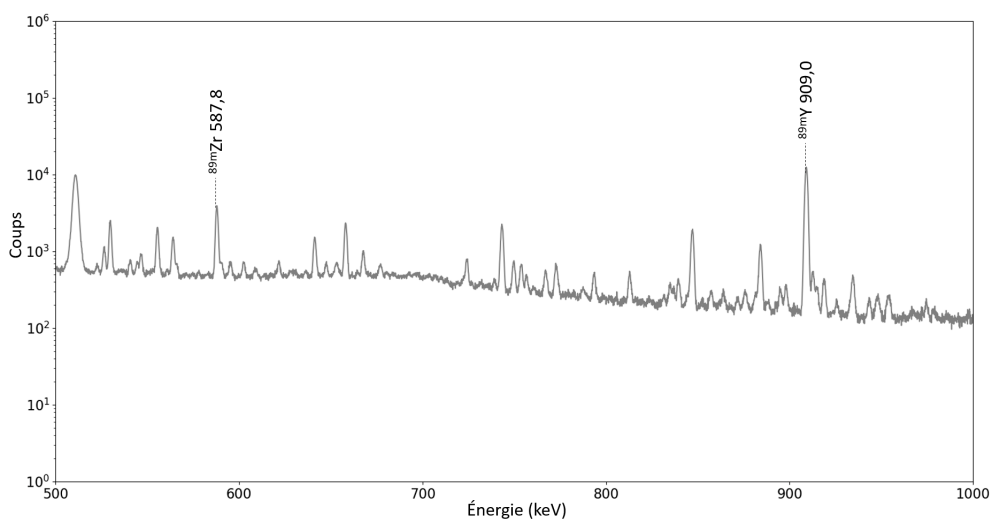


FIGURE 2.16 – Raies gamma émises par le produit d'activation du ^{90}Zr et son descendant pour la campagne de 2019.

2.1.2.3.3 Campagne expérimentale de 2021

La Figure 2.17 présente les raies gamma émises par les produits d'activation formés dans les pastilles de matériaux non nucléaires. Les spectres mesurés suite à l'irradiation des échantillons d'UA et d'UHE sont disponibles sur les Figures 2.18 et 2.19. On y voit apparaître respectivement les rayonnements gamma émis par l' ^{237}U et par les produits d'activation du ^{90}Zr .

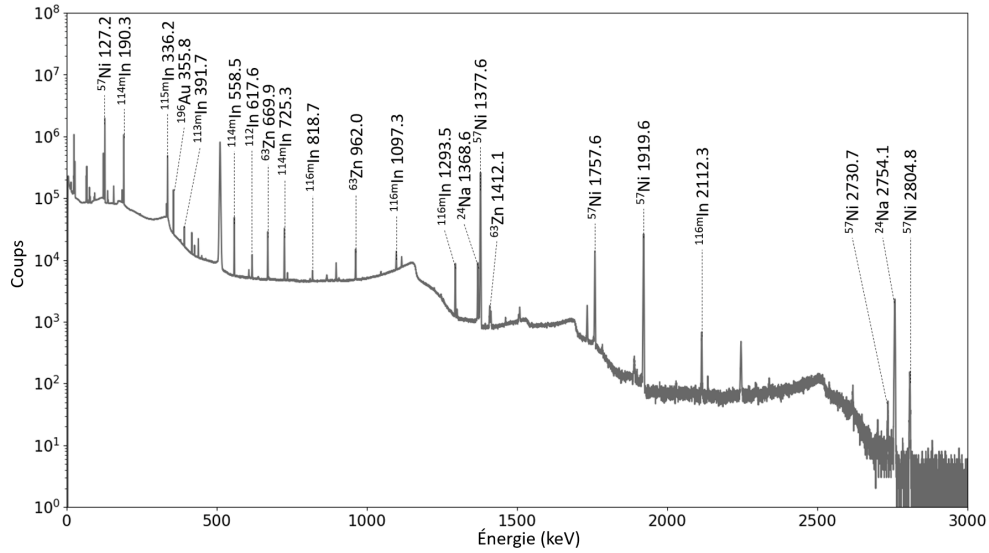


FIGURE 2.17 – Spectre de rayonnements gamma d'activation pour les pastilles de matériaux non-nucléaires irradiés en 2021.

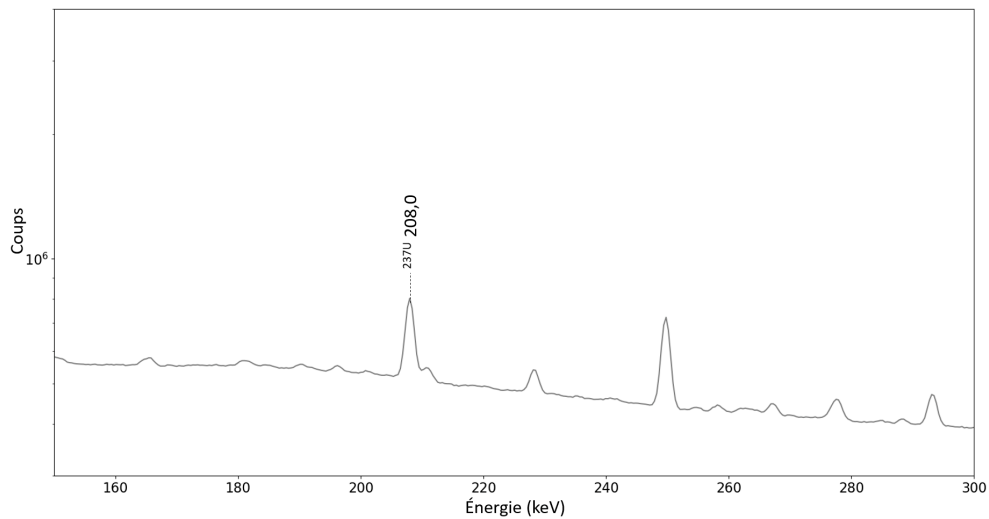


FIGURE 2.18 – Raie gamma émise par l' ^{237}U formé par l'activation de l' ^{238}U pour la campagne de 2021.

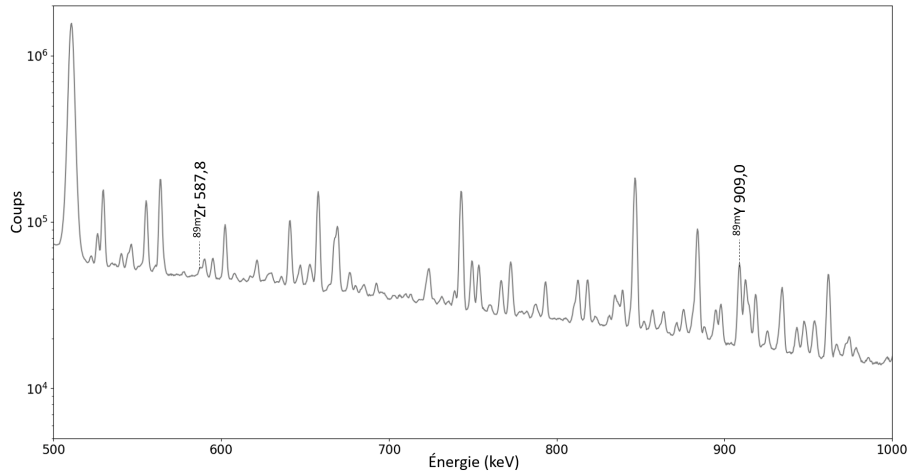


FIGURE 2.19 – Raies gamma émises par le produit d’activation du ^{90}Zr et son descendant pour la campagne de 2021.

Les raies gamma de $^{89\text{m}}\text{Zr}$ et $^{89\text{m}}\text{Y}$ de la Figure 2.19 sont moins visibles que celles sur la Figure 2.16. Ceci est explicable par la plus faible masse de zirconium contenue dans l’échantillon d’UHE (diminution d’un facteur 3,7) et une masse d’uranium plus élevée (augmentation d’un facteur 25), mettant davantage en évidence les rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission.

2.2 Caractérisation des faisceaux de photons et de neutrons

2.2.1 Caractérisation du spectre de photons de *Bremsstrahlung*

Nous proposons de détailler la méthode de caractérisation pour la première campagne expérimentale et de présenter les différences et les résultats concernant la deuxième campagne dans cette section.

2.2.1.1 Principe de la méthode

Parmi les matériaux décrits dans le Tableau 2.6, certains sont enclins à subir des réactions avec les photons de haute énergie produits par le LINAC. Les réactions qui nous intéressent pour la caractérisation du faisceau de photons sont les réactions (γ, n) , dont on donne les sections efficaces pour les isotopes d’intérêt sur la Figure 2.20. Il est important de mentionner que l’or est un matériau souvent utilisé pour le monitoring du flux de photons [95, 101, 102].

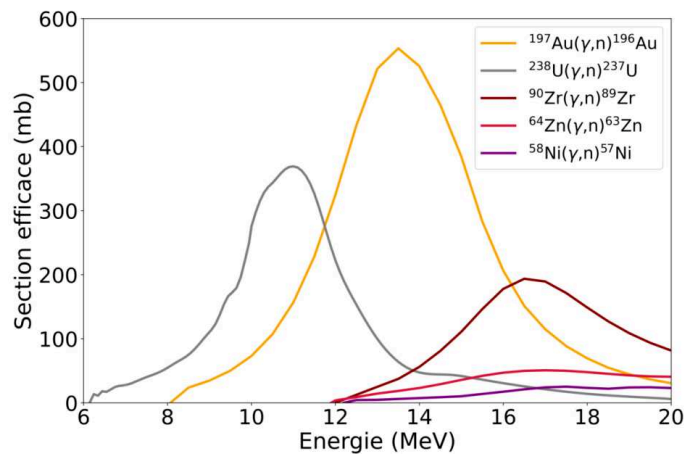


FIGURE 2.20 – Sections efficaces de réaction (γ, n) [40] pour les isotopes d’intérêt dans la caractérisation du faisceau de photons du LINAC.

L'activation photonique de ces matériaux a été analysée afin d'estimer l'énergie de fin du *Bremsstrahlung* et le flux de photons délivré par le LINAC, via une méthode d'ajustement utilisant comme paramètres libres ceux décrivant la distribution en énergie des électrons du LINAC. La méthode est basée sur la variation des sections efficaces de réaction (γ, n) avec l'énergie des photons incidents [103]. Chaque réaction (γ, n) possédant un seuil en énergie différent et une forme unique pour sa section efficace, elles permettent de rechercher la distribution en énergie des électrons donnant le flux de photons incident sur les échantillons qui décrit le mieux l'activation observée pour les différents matériaux utilisés. Dans cette optique, plusieurs types de distributions en énergie des électrons ont été simulées avec MCNP6 [104]. Dans un premier temps, des électrons monoénergétiques ont été simulés sur une large gamme en énergie, mais aucune configuration ne permettait de reproduire l'activation observée expérimentalement pour tous les matériaux. De la même façon, une distribution en énergie gaussienne s'est avérée incompatible avec les caractéristiques du LINAC. Finalement, en se basant sur des simulations de la dynamique faisceau réalisées par le fournisseur du LINAC, Thales [105], comme montré sur la Figure 2.21, une distribution « semi-gaussienne » de l'énergie des électrons a été sélectionnée, comme schématisé sur la Figure 2.22.

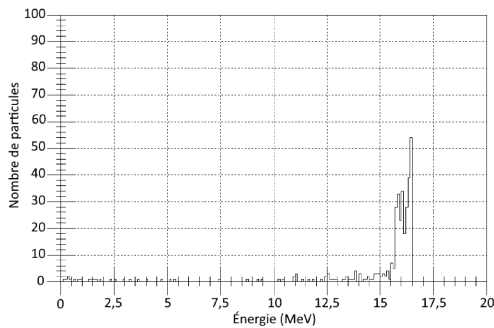


FIGURE 2.21 – Simulation de l'histogramme d'énergie en sortie de section accélératrice pour un point de fonctionnement du Saturne à 15 MeV [105].

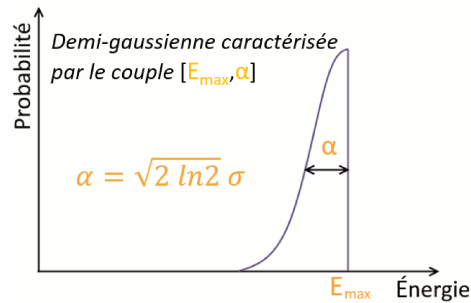


FIGURE 2.22 – Forme de la distribution en énergie des électrons du Saturne.

A travers cette méthode, de nombreuses distributions en énergie des électrons ont été simulées, avec à chaque fois un couple différent de paramètres $[E_{max}, \alpha]$, où E_{max} est l'énergie maximale des électrons, qui correspond à l'énergie de fin de faisceau de *Bremsstrahlung*, et α est la largeur à mi-hauteur de la distribution semi-gaussienne. Sachant qu'aucun dispositif permettant la mesure de l'énergie des électrons ne peut être installé sur le LINAC, les distributions en énergie sélectionnées suite à l'application de cette méthode ne pourront être vérifiées. Néanmoins, nous ne cherchons pas à connaître la distribution en énergie réelle des électrons, mais à déterminer une distribution plausible pour reproduire au mieux par simulation l'activation des matériaux observée expérimentalement. Pour chaque distribution d'électrons, le taux de réaction (γ, n) dans les matériaux et le flux de photons de *Bremsstrahlung* arrivant devant les échantillons cibles ont été simulés avec MCNP.

À la distance d de la cible en tungstène du LINAC, le flux de photons expérimental est donné par l'équation (2.1) pour l'or, l'uranium, le zinc et le nickel (le cas du zirconium est abordé plus bas).

$$\Phi_{d,exp}(E_\gamma) = \frac{N_{exp}(E_\gamma) \times \lambda}{I(E_\gamma) \times \varepsilon(E_\gamma) \times f (1 - e^{-\lambda t_{irr}}) e^{-\lambda t_{refr}} (1 - e^{-\lambda t_{mes}})} \frac{1}{\int_{E_{seui}}^{E_{max}} \varphi(E) \times \sigma(E) dE} \Phi_{d,simul} \quad (2.1)$$

Avec :

- $\Phi_{d,exp}(E_\gamma)$ le flux de photons de *Bremsstrahlung* total à la distance d (*i.e.* le flux de photons induisant l'activation mesurée dans l'échantillon et calculé à partir du nombre net de coups dans le pic photoélectrique à l'énergie E_γ), donné en photons.cm².impulsion⁻¹ ;

- $N_{exp}(E_\gamma)$ le nombre net de coups (après soustraction du fond Compton et des potentielles raies gamma interférentes) dans la raie gamma d'intérêt ;
- λ la constante de désintégration du produit d'activation, issue de la base de données JEFF-3.3, donnée en s^{-1} [106] ;
- $I(E_\gamma)$ l'intensité d'émission du gamma d'énergie E_γ (nombre de gamma émis par désintégration), issue de la base de données JEFF-3.3 [106] ;
- $\varepsilon(E_\gamma)$ l'efficacité totale de détection (nombre de coups dans le détecteur Ge HP dans le pic photoélectrique d'énergie E_γ par gamma émis dans l'échantillon à cette énergie), obtenue avec MCNP ;
- f la fréquence du LINAC, en Hz (ou impulsions. s^{-1}) ;
- t_{irr} , t_{refr} et t_{mes} respectivement le temps d'irradiation, de refroidissement et de comptage, en s ;
- $\Phi_{d,simul}$ l'intégrale du flux de photons de *Bremsstrahlung* à la distance d , obtenu par simulation MCNP des électrons du LINAC freinés par la cible en tungstène, en photons. cm^{-2} .électron source $^{-1}$;
- $\int_{E_{seuil}}^{E_{max}} \varphi(E) \times \sigma(E) dE$ le taux de réaction (γ,n) dans l'échantillon, calculé avec MCNP, qui correspond à l'intégrale du flux de *Bremsstrahlung* $\varphi(E)$ convolué par la section efficace de réaction $\sigma(E)$, de l'énergie seuil E_{seuil} à l'énergie de fin de faisceau E_{max} , en réactions.électron source $^{-1}$.

L'analyse par activation photonique du ^{90}Zr est plus complexe car le produit d'activation ^{89}Zr peut être formé dans son état fondamental ^{89}Zr (période de 78,4h), mais aussi dans un état isomérique ^{89m}Zr de période 250,8s et qui se désexcite en émettant un rayonnement gamma de 588 keV. De plus, la désintégration du ^{89}Zr conduit à l'isomère ^{89m}Y de période 15,7s qui se désexcite en émettant un rayonnement gamma de 909 keV, voir Tableau 2.6 et Figure 2.23. Nous devons donc analyser la formation de ^{89m}Zr et de ^{89m}Y , émettant tous les deux des rayonnements gamma lors de leur transition isomérique. Le schéma de filiation correspondant est donné sur la Figure 2.23 et plus de détails sur les différentes décroissances peuvent être trouvés dans la référence [107]. Pour la résolution des équations d'évolution, on note N_1 , N_2 et N_3 le nombre de noyaux de ^{89m}Zr , ^{89}Zr et ^{89m}Y , respectivement. Les périodes radioactives des isotopes correspondants sont notées avec les mêmes indices. On note P la probabilité de conversion interne du noyau de ^{89m}Zr et k la probabilité de décroissance β^+ du noyau ^{89}Zr vers le noyau excité ^{89m}Y . Les périodes et probabilités de décroissance sont issues de la base de données JEFF-3.3 [106].

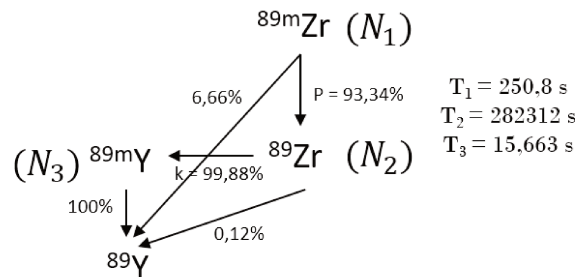


FIGURE 2.23 – Schéma de filiation pour la formation de ^{89}Zr par activation du ^{90}Zr .

Nous cherchons à quantifier le nombre de réactions (γ,n) ayant formé du ^{89}Zr , dans l'état fondamental ou excité, à partir du ^{90}Zr . L'équation (2.2) régit le nombre de noyaux de ^{89m}Zr présents au cours du temps après une irradiation suivie d'un refroidissement :

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 \quad (2.2)$$

Le nombre de rayonnements gamma de 588 keV détectés peut être relié au nombre de noyaux de ^{89m}Zr ayant décréu vers ^{89}Zr , avec une probabilité P , pendant la période de mesure t_{mes} via l'équation (2.3).

$$\begin{aligned}
 N_{588,det} &= I_1 \times \varepsilon_1 \times P \times N_{1,0} \times (1 - e^{-\lambda_1 t_{mes}}) \\
 &= I_1 \times \varepsilon_1 \times P \times \frac{x \cdot R(^{90}\text{Zr}(\gamma, n)^{89}\text{Zr})}{\lambda_1} (1 - e^{-\lambda_1 t_{irr}}) e^{-\lambda_1 t_{refr}} (1 - e^{-\lambda_1 t_{mes}})
 \end{aligned} \tag{2.3}$$

Où $N_{1,0}$ est le nombre de noyaux de ^{89m}Zr présents après un temps d'irradiation t_{irr} et un temps de refroidissement t_{refr} , qui dépend du taux de réaction $R(^{90}\text{Zr}(\gamma, n)^{89}\text{Zr})$ (en s^{-1}), pondéré par la probabilité de formation du ^{89}Zr dans l'état métastable, ^{89m}Zr , notée x . I_1 et ε_1 sont respectivement l'intensité d'émission et l'efficacité de détection du rayonnement gamma de 588 keV. Comme la période de ^{89m}Y est faible par rapport à celle de ^{89}Zr (15,7 s vs. 78,4 h) et le temps de mesure est élevé (au minimum 22 h), on peut considérer que le nombre de rayonnements gamma de 909 keV émis par le ^{89m}Y correspond au nombre de noyaux de ^{89}Zr qui décroissent en ^{89m}Y . L'équation d'évolution du nombre de noyaux de ^{89}Zr peut s'écrire selon (2.4).

$$\frac{dN_2}{dt} = P\lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \tag{2.4}$$

Le nombre de noyaux de ^{89}Zr au cours du temps est donné par l'équation (2.5).

$$N_2(t) = P \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{1,0} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_{2,0} e^{-\lambda_2 t} \tag{2.5}$$

Où $N_{2,0}$ est le nombre de noyaux de ^{89m}Zr ayant décru en ^{89}Zr après l'irradiation et le refroidissement, auquel s'ajoute le nombre de noyaux de ^{89}Zr créés directement par irradiation et subsistant après le temps de refroidissement. Il est calculé par l'équation (2.6).

$$\begin{aligned}
 N_{2,0} &= x \cdot R(^{90}\text{Zr}(\gamma, n)^{89}\text{Zr}) \left[\frac{P}{\lambda_2 - \lambda_1} \left\{ (1 - e^{-\lambda_1 t_{irr}}) e^{-\lambda_1 t_{refr}} + (1 - e^{-\lambda_2 t_{irr}}) e^{-\lambda_2 t_{refr}} \right\} + \dots \right. \\
 &\quad \left. \dots + \frac{P}{\lambda_2} (1 - e^{-\lambda_2 t_{irr}}) e^{-\lambda_2 t_{refr}} \right] + y \cdot R(^{90}\text{Zr}(\gamma, n)^{89}\text{Zr}) \times \frac{1}{\lambda_2} (1 - e^{-\lambda_2 t_{irr}}) e^{-\lambda_2 t_{refr}}
 \end{aligned} \tag{2.6}$$

Où y est la probabilité de formation de ^{89}Zr dans l'état fondamental suite à la réaction (γ, n) sur ^{90}Zr . Finalement, le nombre détecté de rayonnements gamma de 909 keV émis par ^{89m}Y lors de sa décroissance peut être approximé par l'équation (2.7), où k est la probabilité que ^{89}Zr décroisse en ^{89m}Y (voir Figure 2.23).

$$\begin{aligned}
 N_{909,det} &\approx I_3 \times \varepsilon_3 \times k \dots \\
 &\dots \times \left(x \cdot R \left[\frac{1}{\lambda_2 - \lambda_1} \left\{ (1 - e^{-\lambda_1 t_{irr}}) e^{-\lambda_1 t_{refr}} (e^{-\lambda_2 t_{mes}} - e^{-\lambda_1 t_{mes}}) \dots \right. \right. \right. \\
 &\quad \left. \left. \left. \dots + P (1 - e^{-\lambda_2 t_{mes}}) \left\{ (1 - e^{-\lambda_1 t_{irr}}) e^{-\lambda_1 t_{refr}} + (1 - e^{-\lambda_2 t_{irr}}) e^{-\lambda_2 t_{refr}} \right\} \right\} \dots \right. \right. \\
 &\quad \left. \left. \left. \dots + \frac{P}{\lambda_2} (1 - e^{-\lambda_2 t_{irr}}) e^{-\lambda_2 t_{refr}} (1 - e^{-\lambda_2 t_{mes}}) \right] + y \cdot R \times \frac{1}{\lambda_2} (1 - e^{-\lambda_2 t_{irr}}) e^{-\lambda_2 t_{refr}} (1 - e^{-\lambda_2 t_{mes}}) \right)
 \end{aligned} \tag{2.7}$$

Grâce aux rayonnements gamma de 588 keV et 909 keV détectés, on peut remonter à x et y , et donc au taux de réaction total $R(^{90}\text{Zr}(\gamma, n)^{89}\text{Zr})$ pour chaque campagne expérimentale. Le flux de photons à la distance d pour le zirconium, traduisant l'activation observée est calculé d'une façon similaire à (2.1) avec l'équation (2.8).

$$\Phi_{d,exp}(E_\gamma) = \frac{N_{909,exp}}{I(E_\gamma) \times \varepsilon(E_\gamma) \times k \times f} \times \frac{1}{x \cdot (A \times C_1 + B \times C_2 + F \times C_3) + y \cdot (\Delta \times C_3)} \times \frac{\Phi_{d,simul}}{\int_{E_{seuil}}^{E_{max}} \varphi(E) \times \sigma(E) dE} \tag{2.8}$$

Avec :

- $N_{909,exp}$ l'aire nette du pic photoélectrique à 909 keV (en coups) ;
- $I(E_\gamma)$ et $\varepsilon(E_\gamma)$ respectivement l'intensité d'émission et l'efficacité de détection du gamma de 909 keV (nombres sans dimension) ;
- k est la probabilité que ^{89}Zr décroisse en ^{89m}Y ;
- f la fréquence du LINAC en Hz ;
- x et y , respectivement la part de ^{89}Zr produit dans l'état métastable et fondamental ;
- $A = 1/(\lambda_2 - \lambda_1)$, $B = P/(\lambda_2 - \lambda_1)$, $\Gamma = P/\lambda_2$ et $\Delta = 1/\lambda_2$;
- $C_1 = (1 - e^{-\lambda_1 t_{irr}})e^{-\lambda_1 t_{refr}}(e^{-\lambda_2 t_{mes}} - e^{-\lambda_1 t_{mes}})$;
- $C_2 = (1 - e^{-\lambda_2 t_{mes}}) \left\{ (1 - e^{-\lambda_1 t_{irr}})e^{-\lambda_1 t_{refr}} + (1 - e^{-\lambda_2 t_{irr}})e^{-\lambda_2 t_{refr}} \right\}$;
- $C_3 = (1 - e^{-\lambda_2 t_{irr}})e^{-\lambda_2 t_{refr}}(1 - e^{-\lambda_2 t_{mes}})$;
- $\Phi_{d,simul}$ l'intégrale du flux de photons de *Bremsstrahlung* à la distance d , obtenu par simulation MCNP des électrons du LINAC freinés par la cible en tungstène, en photons.cm⁻².électron source⁻¹ ;
- $\int_{E_{seuil}}^{E_{max}} \varphi(E) \times \sigma(E) dE$ le taux de réaction $^{90}\text{Zr}(\gamma, n)^{89}\text{Zr}$ dans l'échantillon, calculé avec MCNP, qui correspond à l'intégrale du flux de *Bremsstrahlung* $\varphi(E)$ convolué par la section efficace de réaction $\sigma(E)$, de l'énergie seuil E_{seuil} à l'énergie de fin de faisceau E_{max} , en réactions.électron source⁻¹.

Un facteur de mérite a été utilisé pour sélectionner la distribution en énergie des électrons la plus vraisemblable, c'est-à-dire conduisant aux flux de photons calculés pour chaque matériau les plus proches les uns des autres. Il consiste à réaliser la somme des écarts quadratiques entre les flux calculés pour tous les matériaux, comme indiqué dans (2.9).

$$FOM = \sqrt{\sum_{i,j|j>i} (\Phi_i - \Phi_j)^2} \quad (2.9)$$

Où Φ_i et Φ_j sont les flux de photons expérimentaux calculés avec les différents matériaux activés. La distribution en énergie des électrons la plus vraisemblable correspond au facteur de mérite le plus faible parmi tous les couples de paramètres $[E_{max}, \alpha]$. Les détails de la méthode pour chaque campagne expérimentale sont donnés dans les sections suivantes.

2.2.1.2 Campagne expérimentale de 2019

Lors de la campagne expérimentale de 2019, 4 matériaux ont été irradiés dans le but de caractériser le faisceau de photons du LINAC. Il s'agit de l'or, du nickel, de l'uranium appauvri et du zirconium (*cf.* Tableau 2.2). Les aires nettes des raies gamma dans les différents spectres d'activation sont obtenues avec Genie2000 et sont répertoriées dans le Tableau 2.7.

TABLEAU 2.7 – Raies gamma d'activation par réaction (γ, n) pour la campagne de 2019.

Isotope activé	Produit d'activation	Raie gamma analysée (keV)	Aire nette (coups)
^{197}Au	^{196}Au	355,73	22332 ± 589
^{58}Ni	^{57}Ni	127,16	427713 ± 1454
^{238}U	^{237}U	208,00	551097 ± 248
^{90}Zr	^{89m}Zr	587,80	44363 ± 248
	^{89}Zr	-	-
	^{89m}Y	908,96	182607 ± 438

Les paramètres de la distribution semi-gaussienne ont dans un premier temps été testés entre 13 et 16,5 MeV par pas de 0,5 MeV pour E_{max} et de 0 (cas mono-énergétique) à 2,5 MeV par pas de 0,5 MeV pour α . L'analyse des facteurs de mérite obtenus a ensuite conduit à faire varier plus finement E_{max} de 15,6 MeV à 16,5 MeV par pas de 0,1 MeV et α de 0,5 à 2 MeV par pas de 0,5 MeV. Le facteur de

mérite pour ces différentes distributions est donné dans le Tableau 2.8, celle qui le minimise ayant une énergie maximale $E_{max} = 15,8 \text{ MeV}$ et une largeur à mi-hauteur $\alpha = 1 \text{ MeV}$.

TABLEAU 2.8 – Facteur de mérite pour les distributions en énergie testées pour la campagne de 2019, avec E_{max} et α en MeV.

$\alpha \backslash E_{max}$	15,6	15,7	15,8	15,9	16,0	16,1	16,2	16,3	16,4	16,5
0,5	2,43.10 ⁷	2,81.10 ⁷	3,43.10 ⁷	4,27.10 ⁷	4,85.10 ⁷	5,48.10 ⁷	6,00.10 ⁷	6,45.10 ⁷	6,87.10 ⁷	7,68.10 ⁷
1,0	3,28.10 ⁷	2,33.10 ⁷	1,90.10 ⁷	2,17.10 ⁷	3,18.10 ⁷	3,20.10 ⁷	4,54.10 ⁷	5,26.10 ⁷	5,76.10 ⁷	6,21.10 ⁷
1,5	6,89.10 ⁷	4,81.10 ⁷	3,72.10 ⁷	2,41.10 ⁷	2,84.10 ⁷	2,85.10 ⁷	3,00.10 ⁷	3,54.10 ⁷	4,28.10 ⁷	5,20.10 ⁷
2,0	8,64.10 ⁷	7,52.10 ⁷	6,27.10 ⁷	5,08.10 ⁷	4,10.10 ⁷	2,47.10 ⁷	2,25.10 ⁷	2,12.10 ⁷	2,86.10 ⁷	3,63.10 ⁷

Une représentation graphique permettant de visualiser la convergence des quatre flux de photons pour $\alpha = 1 \text{ MeV}$ est disponible sur la Figure 2.24.

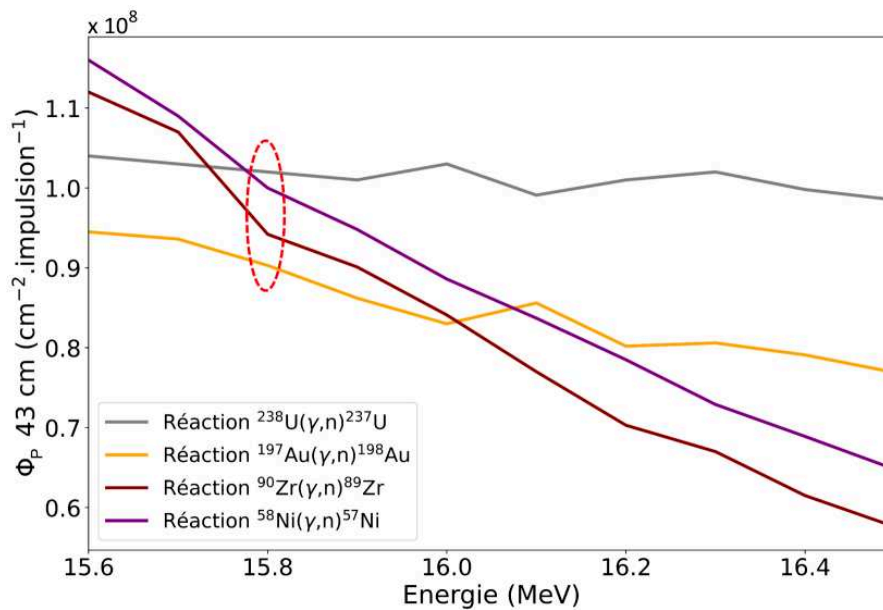


FIGURE 2.24 – Représentation graphique des flux de photons calculés pour les quatre matériaux avec $\alpha = 1 \text{ MeV}$ pour la campagne de 2019.

Les flux de photons correspondant à la distribution énergétique des électrons [$E_{max} = 15,8 \text{ MeV}$; $\alpha = 1 \text{ MeV}$] pour tous les matériaux irradiés ainsi que le flux de photons moyen à 43 cm de la cible sont donnés dans le Tableau 2.9.

TABLEAU 2.9 – Flux de photons expérimentaux calculés pour les quatre matériaux et la distribution en énergie des électrons la plus probable lors de la campagne de 2019.

Isotope activé	$\Phi_{43 \text{ cm}, exp}$ (photons.cm ⁻² .impulsion ⁻¹)
¹⁹⁷ Au	$(9,02 \pm 1,26) \times 10^7$
⁵⁸ Ni	$(10,05 \pm 1,33) \times 10^7$
²³⁸ U	$(10,21 \pm 1,36) \times 10^7$
⁹⁰ Zr	$(9,43 \pm 1,25) \times 10^7$
Flux de photons moyen : $\bar{\Phi}_{43 \text{ cm}, exp} = (9,68 \pm 1,35) \times 10^7 \text{ photons.cm}^{-2}.\text{impulsion}^{-1}$	

L'incertitude sur le flux de photons ainsi estimé pour chaque matériau est la combinaison quadratique des sources d'incertitude suivantes :

- une incertitude relative estimée à 10 % sur la section efficace de réaction (γ, n) pour les isotopes activés, selon la bibliothèque de sections efficaces EXFOR [108]. À titre d'exemple, l'incertitude sur la section efficace de réaction $^{197}\text{Au}(\gamma, n)^{196}\text{Au}$ mesurée par Plaisir et al. est de 10 % [109];

- une incertitude relative de 7 % sur l'efficacité de détection prenant en compte celle sur l'efficacité intrinsèque du détecteur (moins de 5 %, en accord avec l'optimisation du modèle MCNP du détecteur à l'aide de sources de référence) et celle sur la modélisation des échantillons (estimée à 5 % en raison principalement de l'incertitude sur leurs dimensions, qui influe significativement sur le calcul de l'auto-absorption gamma, et dans une moindre mesure sur leur distance par rapport au détecteur). Les efficacités intrinsèques et géométriques sont combinées quadratiquement et on obtient ainsi une incertitude relative de 7 % sur l'efficacité de détection totale ;
- une incertitude statistique liée au résultat de la simulation MCNP, inférieure à 5 % pour tous les calculs d'activation des échantillons ;
- des incertitudes associées aux constantes de décroissance radioactive et aux intensités d'émission gamma des produits d'activation, issues de la base de données JEFF-3.3 [106], inférieures à 2 % ;
- une incertitude sur l'aire nette de la raie gamma considérée, reportée dans le Tableau 2.7, n'excédant pas 2,6 %.

L'incertitude associée au flux de photons moyen est estimée, de façon conservative, comme la combinaison quadratique de l'incertitude moyenne associée à chacun des quatre flux de photons calculés ci-dessus, qui est d'environ 13 %, et de l'écart-type des flux de photons obtenus avec ces quatre matériaux qui est calculé comme suit :

$$\frac{\sigma_{distrib}}{\bar{\Phi}} = \frac{1}{\bar{\Phi}} \sqrt{\frac{(\Phi_{Au} - \bar{\Phi})^2 + (\Phi_{Ni} - \bar{\Phi})^2 + (\Phi_U - \bar{\Phi})^2 + (\Phi_{Zr} - \bar{\Phi})^2}{4}} = 5 \%$$

Au final, l'incertitude relative sur le flux de photons en 2019 est estimée à 13,9 %. La conversion du flux moyen de photons à 43 cm en nombre effectif d'électrons source incidents sur la cible en tungstène donne $n_{e,2019} = (1,31 \pm 0,18) \times 10^{11}$ électrons.impulsion⁻¹. On peut comparer cette estimation au nombre théorique d'électrons par impulsion obtenu en considérant une forme d'impulsion rectangulaire, un courant crête de 10 mA et une largeur d'impulsion de 4 μ s, lequel vaut $n_{e,théorique} = 2,50 \times 10^{11}$ électrons.impulsion⁻¹. La différence peut s'expliquer par le fait que l'impulsion n'est en réalité pas parfaitement rectangulaire et que son intégrale conduit donc à un plus faible nombre d'électrons.

A titre de vérification, nous avons comparé les taux de réaction (γ, n) expérimental et simulé dans le lingot d'²³⁸U. Le taux de réaction expérimental est calculé via l'équation (2.10).

$$R_{exp} [^{238}U(\gamma, n)^{237}U] = \frac{N(208 \text{ keV})}{I(208 \text{ keV}) \times \varepsilon(208 \text{ keV}) \times e^{-\lambda t_{refr}} \times (1 - e^{-\lambda t_{mes}}) \times t_{irr} \times f} \quad (2.10)$$

Avec :

- $R_{exp} [^{238}U(\gamma, n)^{237}U]$ le taux de réaction expérimental, exprimé en réactions.impulsion⁻¹ ;
- $I(208 \text{ keV})$ l'intensité d'émission du gamma de 208 keV émis par l'²³⁸U ;
- $\varepsilon(208 \text{ keV})$ l'efficacité de détection à 208 keV, simulée avec MCNP ;
- $N(208 \text{ keV})$ l'aire nette de la raie à 208 keV ;
- λ la constante radioactive de ²³⁷U, issue de la base de données JEFF-3.3 [106], donnée en s⁻¹ ;
- t_{irr} , t_{refr} et t_{mes} les temps d'irradiation, de refroidissement et de comptage, respectivement, donnés en s ;
- f la fréquence du LINAC, en Hz.

On obtient $R_{exp} [^{238}U(\gamma, n)^{237}U] = (7,51 \pm 0,53) \times 10^5$ réactions.impulsion⁻¹. L'incertitude relative est calculée comme la combinaison quadratique de l'incertitude de 7 % sur l'efficacité de détection, l'incertitude de 0,3 % sur l'intensité d'émission du rayonnement gamma de 208 keV [106] et de l'incertitude statistique de 0,22 % sur l'aire nette de la raie à 208 keV.

Le taux de réaction simulé est quant à lui donné par l'équation (2.11) et est calculé via MCNP avec une source d'électrons possédant la distribution en énergie du flux de photons interrogateur la plus cohérente avec l'activation observée des quatre matériaux.

$$R_{simul} [^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}] = \int_{E_{seuil}}^{E_{max}} \varphi(E) \times \sigma_{(\gamma, n)}(E) dE \times n_{e,2019} \quad (2.11)$$

Avec :

- $R_{simul} [^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}]$ le taux de réaction simulé, exprimé en réactions.impulsion⁻¹ ;
- E_{seuil} et E_{max} l'énergie seuil de la réaction $^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$ et l'énergie de fin de faisceau de *Bremsstrahlung*, respectivement ;
- $\varphi(E)$ le flux de photons de *Bremsstrahlung* à l'énergie E en cm⁻².électron source⁻¹ ;
- $\sigma_{(\gamma, n)}(E)$ la section efficace de réaction $^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$ à l'énergie E , en cm² ;
- $n_{e,2019}$ le nombre d'électrons incidents sur la cible en tungstène, en électrons.impulsion⁻¹.

Au final, on obtient $R_{simul} [^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}] = (7, 15 \pm 1, 19) \times 10^5$ réactions.impulsion⁻¹. L'incertitude relative sur le résultat est calculée par combinaison quadratique de l'incertitude de 13,9 % sur le nombre d'électrons, liée à l'incertitude sur le flux de photons, de l'incertitude de 10 % sur la section efficace de réaction $^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$ et de l'incertitude statistique de 0,4 % sur le résultat de simulation MCNP du taux de réaction par électron source. L'écart de 4,8 % entre les taux de réaction expérimental et simulé est satisfaisant et permet de conforter l'estimation du nombre d'électrons incidents sur la cible du LINAC calculé pour la campagne de 2019 grâce à l'activation des quatre matériaux.

La distribution en énergie des électrons la plus vraisemblable et le spectre de *Bremsstrahlung* associé pour la campagne expérimentale de 2019 sont montrés sur la Figure 2.25.

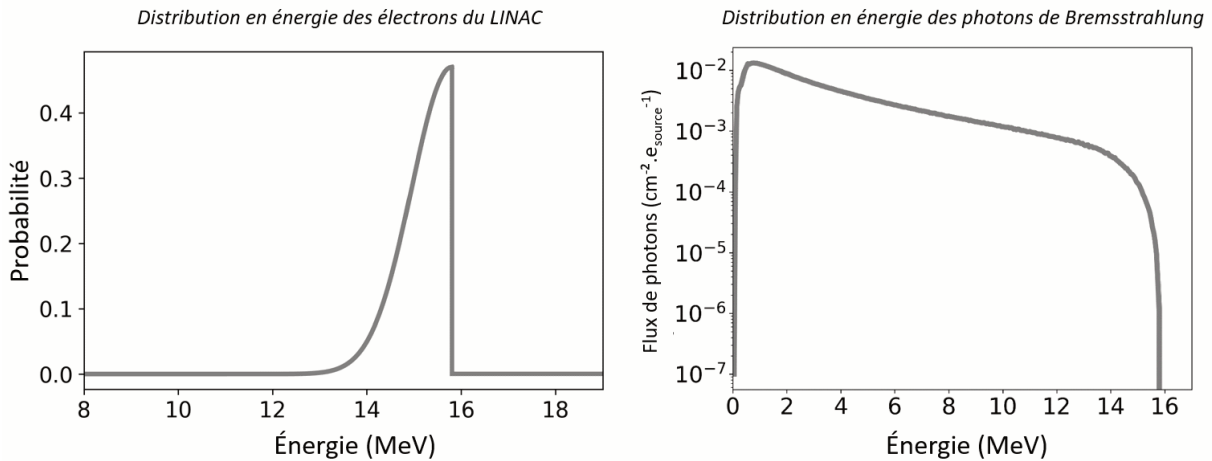


FIGURE 2.25 – Distribution en énergie des électrons (à gauche) et des photons de *Bremsstrahlung* (à droite) du LINAC pour les expériences de 2019.

2.2.1.3 Campagne expérimentale de 2021

Lors de la campagne expérimentale de 2021, 5 matériaux ont été irradiés dans le but de caractériser le faisceau de photons du LINAC. Ce sont les mêmes qu'en 2019 auxquels a été rajoutée une pastille de zinc pour améliorer la robustesse de la méthode par l'ajout d'un matériau supplémentaire dans l'analyse par activation photonique (cf. caractéristiques en Tableau 2.4, Tableau 2.6 et Figure 2.20). Les aires nettes des raies gamma du Tableau 2.10 sont obtenues avec Genie2000.

Pour les simulations support à la caractérisation du faisceau de photons, E_{max} a été variée entre 15 et 18,5 MeV par pas de 0,5 MeV et α de 0 à 2 MeV par pas de 0,5 MeV. Le facteur de mérite pour ces différentes distributions est donné dans le Tableau 2.11. La distribution qui minimise ce facteur de mérite est celle avec une énergie maximale $E_{max} = 17,5 \text{ MeV}$ et une largeur à mi-hauteur $\alpha = 0,5 \text{ MeV}$.

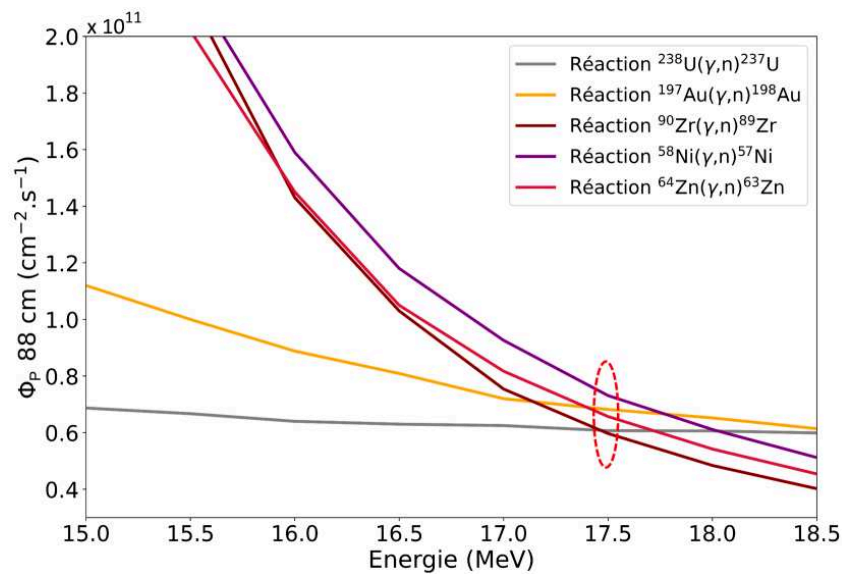
TABLEAU 2.10 – Raies gamma d'activation par réaction (γ,n) pour la campagne de 2021.

Isotope activé	Produit d'activation	Raie gamma analysée (keV)	Aire nette (coups)
^{197}Au	^{196}Au	355,73	549721 ± 741
^{58}Ni	^{57}Ni	1377,62	2411040 ± 1553
^{238}U	^{237}U	208,00	1310540 ± 1145
^{90}Zr	^{89m}Zr	587,80	37223 ± 193
	^{89}Zr	-	-
	^{89m}Y	908,96	222248 ± 472
^{64}Zn	^{63}Zn	669,93	157242 ± 397

 TABLEAU 2.11 – Facteur de mérite pour les distributions en énergie testées pour la campagne de 2021, avec E_{max} et α en MeV.

$\alpha \backslash E_{max}$	15,0	15,5	16,0	16,5	17,0	17,5	18,0	18,5
0	$4,09 \cdot 10^{11}$	$2,31 \cdot 10^{11}$	$1,27 \cdot 10^{11}$	$6,53 \cdot 10^{10}$	$2,92 \cdot 10^{10}$	$2,50 \cdot 10^{10}$	$3,82 \cdot 10^{10}$	$4,65 \cdot 10^{10}$
0,5	$5,65 \cdot 10^{11}$	$3,20 \cdot 10^{11}$	$1,84 \cdot 10^{11}$	$9,74 \cdot 10^{10}$	$5,01 \cdot 10^{10}$	$2,48 \cdot 10^{10}$	$2,95 \cdot 10^{10}$	$4,09 \cdot 10^{10}$
1,0	$7,75 \cdot 10^{11}$	$4,22 \cdot 10^{11}$	$2,51 \cdot 10^{11}$	$1,41 \cdot 10^{11}$	$7,47 \cdot 10^{10}$	$3,87 \cdot 10^{10}$	$2,54 \cdot 10^{10}$	$3,42 \cdot 10^{10}$
1,5	$9,62 \cdot 10^{11}$	$5,56 \cdot 10^{11}$	$3,15 \cdot 10^{11}$	$1,89 \cdot 10^{11}$	$1,03 \cdot 10^{11}$	$5,44 \cdot 10^{10}$	$2,77 \cdot 10^{10}$	$2,85 \cdot 10^{10}$
2,0	$1,05 \cdot 10^{12}$	$6,78 \cdot 10^{11}$	$3,78 \cdot 10^{11}$	$2,28 \cdot 10^{11}$	$1,34 \cdot 10^{11}$	$7,31 \cdot 10^{10}$	$3,57 \cdot 10^{10}$	$2,65 \cdot 10^{10}$

Une représentation graphique permettant de visualiser la convergence des cinq flux de photons pour $\alpha = 0,5 \text{ MeV}$ est disponible sur la Figure 2.26.


 FIGURE 2.26 – Représentation graphique des flux de photons calculés pour les cinq matériaux avec $\alpha = 0,5 \text{ MeV}$ pour la campagne de 2021.

Les flux de photons correspondant à la distribution énergétique des électrons [$E_{max} = 17,5 \text{ MeV}$; $\alpha = 0,5 \text{ MeV}$] pour tous les matériaux irradiés ainsi que le flux de photons moyen à 88 cm de la cible sont donnés dans le Tableau 2.12.

TABLEAU 2.12 – Flux de photons calculés pour les quatre matériaux et la distribution en énergie des électrons la plus probable lors de la campagne de 2021.

Isotope activé	$\Phi_{88 \text{ cm}, \text{exp}}$ (photons.cm ⁻² .impulsion ⁻¹)
¹⁹⁷ Au	$(6,82 \pm 0,87) \times 10^{10}$
⁵⁸ Ni	$(7,31 \pm 0,89) \times 10^{10}$
²³⁸ U	$(6,07 \pm 0,75) \times 10^{10}$
⁹⁰ Zr	$(6,57 \pm 0,84) \times 10^{10}$
⁶⁴ Zn	$(5,97 \pm 0,75) \times 10^{10}$
Flux de photons moyen : $\bar{\Phi}_{88 \text{ cm}, \text{exp}} = (6,55 \pm 0,94) \times 10^{10}$ photons.cm ⁻² .impulsion ⁻¹	

Les incertitudes sur les flux de photons individuels sont calculées de la même façon que pour la campagne de 2019. L'incertitude associée au flux de photons moyen est estimée, de façon conservative, comme la combinaison quadratique de l'incertitude moyenne associée aux quatre flux de photons calculés (environ 12,5%) et de l'écart-type des flux de photons obtenus avec les quatre matériaux :

$$\frac{\sigma_{\text{distrib}}}{\bar{\Phi}} = \frac{1}{\bar{\Phi}} \sqrt{\frac{(\Phi_{Au} - \bar{\Phi})^2 + (\Phi_{Ni} - \bar{\Phi})^2 + (\Phi_U - \bar{\Phi})^2 + (\Phi_{Zr} - \bar{\Phi})^2 + (\Phi_{Zn} - \bar{\Phi})^2}{5}} = 7\%$$

Au final, l'incertitude relative sur le flux de photons en 2021 est de 14,4%. La conversion du flux moyen de photons à 88 cm en nombre d'électrons source incidents sur la cible en tungstène donne : $n_{e,2021} = (1,58 \pm 0,23) \times 10^{12}$ électrons.impulsion⁻¹. Cela coïncide avec l'augmentation du courant crête de 10 mA en 2019 à 100 mA en 2021, car comme on l'a estimé plus haut, ce nombre valait $n_{e,2019} = (1,31 \pm 0,18) \times 10^{11}$ électrons.impulsion⁻¹ en 2019. Au final, le flux de photons à 1 m de la cible du LINAC dans l'axe en 2021 est de $(2,54 \pm 0,38) \times 10^8$ cm⁻².impulsion⁻¹, contre $(1,79 \pm 0,25) \times 10^7$ cm⁻².impulsion⁻¹ en 2019, soit une augmentation d'un facteur 14 entre les deux campagnes expérimentales.

La distribution en énergie des électrons la plus probable et le spectre de *Bremsstrahlung* associé pour la campagne expérimentale de 2021 sont montrés sur la Figure 2.27.

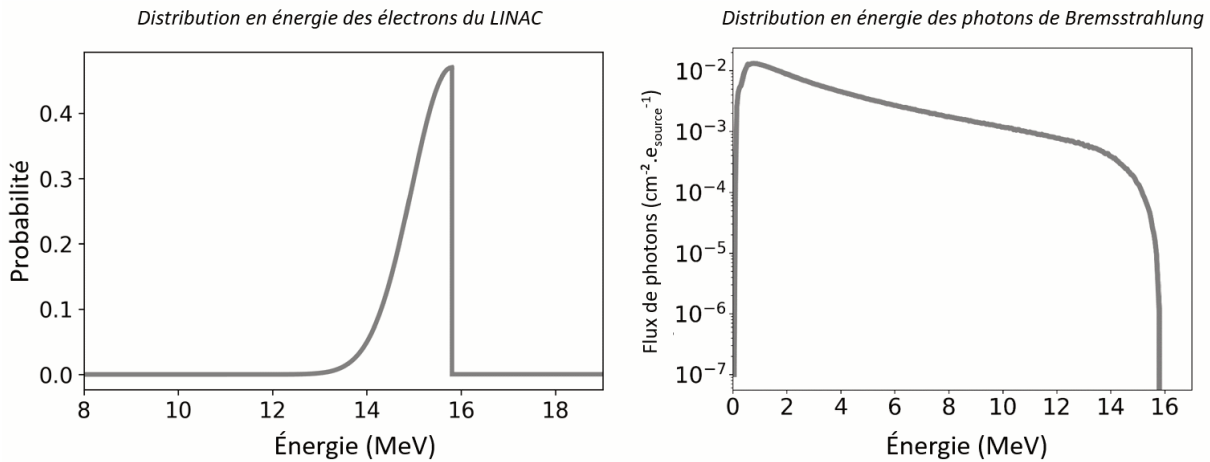


FIGURE 2.27 – Distribution en énergie des électrons (à gauche) et des photons de *Bremsstrahlung* (à droite) du LINAC pour les expériences de 2021.

2.2.2 Caractérisation du spectre de neutrons

Comme mentionné dans la Section 2.1.1, des photoneutrons sont produits lors du fonctionnement du LINAC. Un blindage neutronique a donc été mis en place pour limiter le flux de neutrons thermiques pouvant parvenir au niveau des échantillons d'actinides afin de minimiser les fissions neutroniques parasites. Le but de la caractérisation du spectre neutronique est de permettre de valider le modèle MCNP du collimateur et du blindage neutronique pour l'utiliser dans les simulations au cours de la thèse. Le but sous-jacent est d'estimer la contribution des fissions neutroniques par rapport aux photofissions afin de la soustraire lors du calcul des taux de production des produits de photofission.

2.2.2.1 Principe de la méthode

Certains matériaux présentés dans le Tableau 2.6 sont susceptibles de subir des réactions avec les photoneutrons produits lors de l'interaction des photons de haute énergie avec le dispositif d'irradiation et le cadmium du blindage neutronique (les énergies seuil sont données dans le Tableau 2.1). En l'occurrence, cela concerne les pastilles d'indium, de cuivre, d'or et de magnésium irradiées dans un but de caractérisation neutronique. Les sections efficaces des réactions concernées sont données sur la Figure 2.28. On peut noter que le cuivre n'a finalement pas pu être utilisé car le ^{64}Cu subit une décroissance β^+ dans 62 % des cas, conduisant à la détection de photons de 511 keV indiscernables parmi les nombreuses sources de radioactivité β^+ dans un environnement irradié, et d'autre part il décroît en β^- dans 38 % des cas avec l'émission d'un gamma à 1345 keV de faible intensité (0,475 %), malheureusement inexploitable pour la caractérisation du flux de neutrons. Les réactions $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$ et $^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116\text{m}}\text{In}$ sont utilisées pour la caractérisation du flux de neutrons thermiques et épithermiques (*i.e.*, d'énergie supérieure à 0,5 eV). Enfin, la réaction $^{24}\text{Mg}(n,p)^{24}\text{Na}$ est utile pour la caractérisation du flux de neutrons rapides avec son seuil à 4,95 MeV.

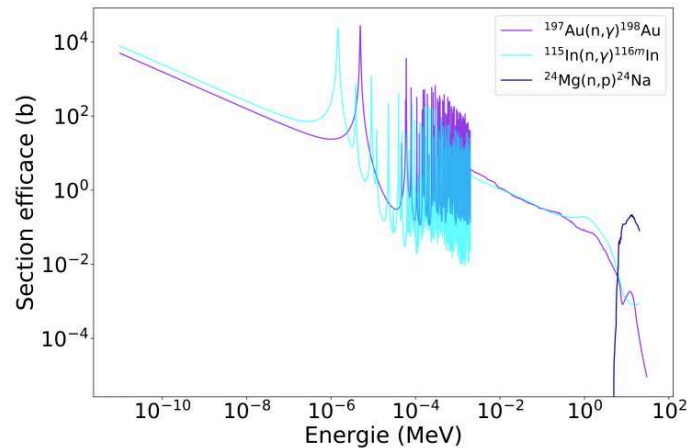


FIGURE 2.28 – Sections efficaces de réactions neutroniques [40] pour les matériaux irradiés.

Dans la section suivante, une caractérisation du spectre neutronique est effectuée pour la campagne de 2019. La comparaison entre l'activation de la pastille d'indium observée expérimentalement et celle obtenue par simulation est utilisée afin de valider le modèle MCNP du dispositif d'irradiation complet (accélérateur, collimateur et blindage neutronique).

2.2.2.2 Caractérisation du spectre neutronique et validation du modèle MCNP du dispositif d'irradiation

Le spectre gamma de la Figure 2.14 issu de l'activation des pastilles SNAC de 2019 semble indiquer la présence de neutrons rapides par la détection de la raie à 332,6 keV du $^{115\text{m}}\text{In}$, formé par la réaction $^{115}\text{In}(n,n')^{115\text{m}}\text{In}$ ayant un seuil aux alentours de 0,5 MeV, mais cette contribution est indiscernable de celle de la réaction $^{115}\text{In}(\gamma,\gamma')$ dont la section efficace est peu documentée [110, 111]. L'observation des raies gamma de $^{116\text{m}}\text{In}$ met en évidence la présence de neutrons épithermiques, *i.e.* d'énergie supérieure à 0,5 eV, qui ne sont pas absorbés par la feuille de cadmium en sortie de blindage. Cependant,

l'activation neutronique de la pastille d'or n'est pas observée via la détection du rayonnement gamma de 411,8 keV malgré une section efficace de réaction (n,γ) comparable à celle de ^{115}In , du fait de sa faible masse (45 mg d'or contre $2 \times 2,711$ g d'indium). Pour illustrer l'efficacité d'absorption des neutrons thermiques par le blindage neutronique, des simulations MCNP ont été effectuées pour évaluer le flux de photoneutrons avec et sans blindage. La Figure 2.30 présente la comparaison des spectres neutroniques au niveau des échantillons, soit à 43 cm de la cible du LINAC. On note la présence de neutrons thermiques en l'absence de blindage neutronique. L'ajout du blindage supprime cette composante grâce au cadmium qui a une très grande section efficace d'absorption neutronique en dessous d'environ 0,5 eV (énergie dite « de coupure du cadmium » au-dessus de laquelle on parle de neutrons épithermiques en physique des réacteurs), comme montré sur la Figure 2.29.

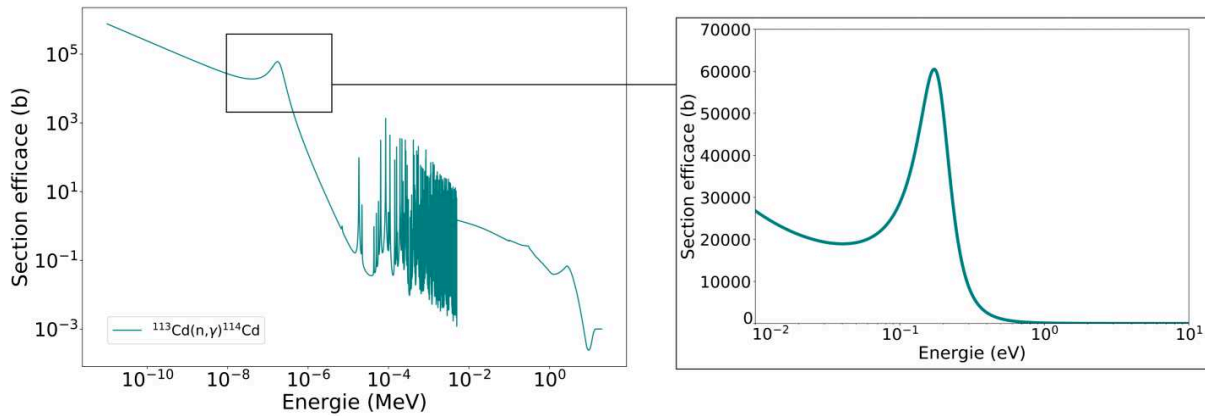


FIGURE 2.29 – Section efficace de réaction (n,γ) [40] pour le ^{113}Cd composant le cadmium naturel à 12,26 %.

Le blindage diminue le flux de neutrons rapides d'un facteur 4,5 mais peuple la composante épithermique du spectre neutronique. Cette dernière augmentation est en partie liée au cadmium ajouté en sortie de blindage qui crée des photoneutrons (voir les seuils en énergie dans le Tableau 2.1). Ceci est illustré sur la Figure 2.31 par la comparaison du flux neutronique avec et sans la présence de cadmium en fin de blindage. En ajoutant seulement du polyéthylène simple et boré, le flux de neutrons d'énergie inférieure à 0,1 eV augmente d'un facteur 58, ce qui est contre-productif par rapport à la volonté de limiter le flux de neutrons thermiques. Par contre, l'ajout de 2 mm de cadmium permet de couper totalement cette composante. Finalement, le flux neutronique au niveau des échantillons est $\phi_n = (7,10 \pm 0,97) \times 10^2$ neutrons.cm⁻².impulsion⁻¹. Le blindage est efficace puisqu'il diminue le flux de neutrons d'un facteur 4 et qu'il coupe totalement la composante thermique du spectre neutronique. Concernant l'origine des photoneutrons en l'absence de blindage, les simulations estiment à 76 % la contribution du collimateur en plomb contre 24 % attribués à la cible en tungstène. Dans le cas avec blindage, 92,6 % des photoneutrons au niveau des échantillons sont issus du cadmium.

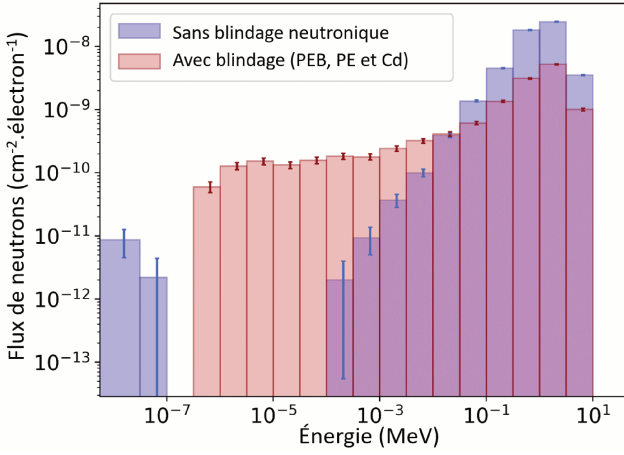


FIGURE 2.30 – Comparaison des flux neutroniques calculés avec MCNP avec et sans blindage neutronique, pour la campagne de 2019.

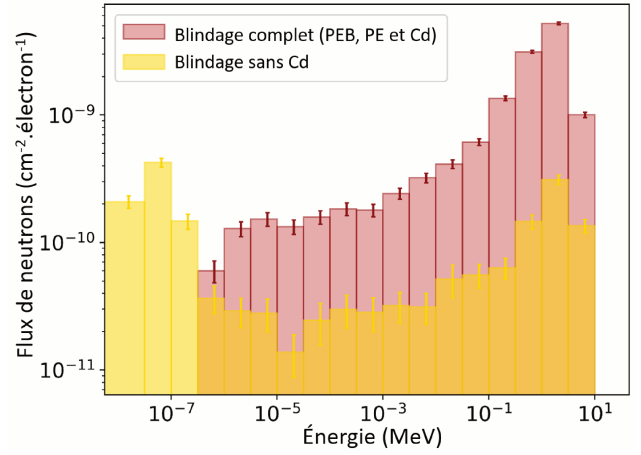


FIGURE 2.31 – Comparaison des flux neutroniques calculés avec MCNP avec et sans cadmium, pour la campagne de 2019.

Il s'agit désormais de valider ce modèle MCNP du blindage neutronique en comparant le nombre de rayonnements gamma d'activation détectés expérimentalement, issus des pastilles SNAC en 2019, avec ceux estimés par simulation MCNP. Pour cela, on s'intéresse aux deux pastilles d'indium irradiées pendant la campagne expérimentale et à la réaction $^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116m}\text{In}$ dont la section efficace est visible sur la Figure 2.28. L'aire nette des six raies gamma identifiées dans le spectre de la Figure 2.14 est comparée avec celle estimée par simulation MCNP. Le spectre neutronique avec blindage complet, visible sur la Figure 2.30, est simulé juste devant les pastilles SNAC en tant que source neutronique dans MCNP. Le taux de réaction $^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116m}\text{In}$ résultant dans les deux pastilles d'indium est utilisé pour estimer l'aire nette des raies gamma émises par le ^{116m}In selon la formule (2.12).

$$N(E_i) = \frac{R(^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116m}\text{In}) \times I(E_i) \times \varepsilon(E_i)}{\lambda} \times (1 - e^{-\lambda t_{irr}}) e^{-\lambda t_{refr}} (1 - e^{-\lambda t_{mes}}) \quad (2.12)$$

Où :

- $N(E_i)$ est l'estimation du nombre de gamma d'énergie E_i détectés (comparé à l'aire nette mesurée) ;
- $R(^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116m}\text{In})$ est le taux de réaction dans les pastilles d'indium calculé par MCNP, en s^{-1} ;
- $I(E_i)$ est l'intensité d'émission du gamma d'énergie E_i , issue de la base de données JEFF-3.3 [106] ;
- $\varepsilon(E_i)$ est l'efficacité de détection pour les raies gamma d'énergie E_i , obtenue par simulation MCNP ;
- λ est la constante de désintégration de ^{116m}In , issue de la base de données JEFF-3.3 [106], en s^{-1} ;
- t_{irr} , t_{refr} et t_{mes} sont respectivement les temps d'irradiation, de refroidissement et de comptage, listés dans le Tableau 2.3.

La comparaison entre les aires expérimentales et simulées pour les raies gamma d'activation est donnée dans le Tableau 2.13. Les nombres de coups expérimentaux correspondent à l'aire nette des raies gamma, obtenue avec le logiciel Genie2000. Les nombres de coups simulés sont calculés avec la formule (2.10) et donnés avec une incertitude de 18 %. Cette dernière correspond à la combinaison quadratique de l'incertitude de 13,9 % sur le flux de photons interrogateur utilisé pour normaliser les résultats de simulation MCNP, de l'incertitude de 7 % sur l'efficacité de détection et de l'incertitude de 10 % sur la section efficace de réaction $^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116m}\text{In}$.

TABLEAU 2.13 – Comparaison expérience/simulation pour l’aire nette des raies gamma émises par le ^{116m}In pour la campagne de 2019.

Énergie (keV)	Intensité (%)	Expérience (coups)	Simulation (coups)	Écart relatif (%)
1293,54	84,70	20250 ± 287	19101 ± 3438	-6
1097,30	57,60	16937 ± 373	15463 ± 2783	-9
416,90	27,95	25069 ± 429	23465 ± 4224	-6
2112,30	15,25	2086 ± 87	2013 ± 362	-4
818,70	11,60	4756 ± 85	4266 ± 768	-10
1508,10	10,42	1942 ± 52	1994 ± 359	+3

Les nombres de coups simulés sont globalement légèrement inférieurs aux nombres de gamma détectés expérimentalement mais l’accord est satisfaisant compte tenu de l’incertitude sur le flux de neutrons de basse énergie à la sortie du blindage neutronique du LINAC. Cette incertitude est principalement due à l’incertitude sur la production de photoneutrons dans la tête du LINAC (elle-même provenant de l’incertitude sur les caractéristiques du faisceau de *Bremsstrahlung* et sur les sections efficaces de production de photoneutrons dans le tungstène et le plomb) et de l’absorption neutronique très importante dans le blindage en polyéthylène et cadmium. L’accord entre l’expérience et la simulation valide le spectre neutronique simulé ayant conduit à l’activation de l’indium et confirme l’efficacité du blindage neutronique avec la feuille de cadmium pour supprimer la composante thermique devant les échantillons. Cette dernière aurait pu poser problème pour les échantillons de matière fissile, par exemple l’ ^{235}U , dont la section efficace de fission par des neutrons thermiques est environ 500 fois plus élevée que celle par des neutrons rapides, ou encore plus de 1500 fois plus élevée que la section efficace de photofission. En conclusion, l’accord entre l’expérience et la simulation nous permet de valider le modèle MCNP du dispositif d’irradiation présenté sur la Figure 2.6. Il sera utilisé dans la suite, y compris pour interpréter les résultats de la campagne expérimentale de 2021. Concernant cette dernière, nous avons vu au cours de la Section 2.2.1.3 que le spectre de photons du LINAC avait une énergie de fin de faisceau de 17,5 MeV contre 15,8 MeV en 2019. Par ailleurs, le nombre d’électrons par impulsion était environ multiplié par un facteur 10 en 2021. Le flux de neutrons pour la campagne de 2021 est donc supérieur, en absolu, à celui de 2019.

La validation du modèle du blindage neutronique et la caractérisation des spectres de *Bremsstrahlung* et de photoneutrons permettront dans le Chapitre 3 d’estimer la part de fissions neutroniques dans les échantillons d’actinides utilisés pour la mesure des taux de production des produits de photofission. Dans le Chapitre 5, l’origine des neutrons sera étudiée dans le cadre de l’irradiation d’un simulant de colis 870 L.

2.3 Analyse du bruit de fond actif

Cette dernière section est dédiée à l’analyse des pics présents dans le bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE dans deux cas de figure. Le premier concerne la cellule vide et se focalise donc sur le bruit de fond actif issu des dispositifs environnants du LINAC, du détecteur GeHP et du blindage installé autour. Le second cas intègre une maquette de colis en béton simulant une tranche de colis de déchets dans la cellule CINPHONIE, lors des expériences de 2021.

2.3.1 Bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE vide

Tout d’abord, intéressons-nous au bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE vide. Son enregistrement a été effectué lors des deux campagnes en 2019 et 2021. Les caractéristiques d’irradiation et de comptage sont données dans le Tableau 2.14.

TABLEAU 2.14 – Caractéristiques d’irradiation et de comptage pour la mesure du bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE vide.

Année	Fréquence d’irradiation (Hz)	Courant crête (mA)	Largeur d’impulsion (μ s)	Temps d’irradiation	Temps de refroidissement	Temps de comptage
2019	100	10	4,0	2 h	30 s	16,7 h
2021	200	100	2,8	2 h	23 s	18,3 h

Lors de la campagne de 2019, le détecteur Ge HP était situé à une distance de 1,60 m du centre du plateau tournant porte-colis. Le LINAC fonctionnant en mode dégradé pour cette campagne, les échantillons d’actinides étaient placés sur un support en polyéthylène lié au banc mécanique et permettant de les positionner au plus près de l’accélérateur et du détecteur, comme montré sur la Figure 2.32.a et la Figure 2.32.b. Par ailleurs, le détecteur Ge HP était blindé avec du polyéthylène et du plomb pour limiter les dommages causés par les photoneutrons produits dans la cellule CINPHONIE. Lors de la mesure du bruit de fond actif, il y avait une épaisseur de 7,28 cm de polyéthylène et une épaisseur de 5 cm de plomb derrière l’échantillon qui est lui situé à environ 20 cm du détecteur, comme schématisé sur la Figure 2.32.c. La configuration de la cellule CINPHONIE pour la campagne de 2019 est schématisée sur la Figure 2.33.

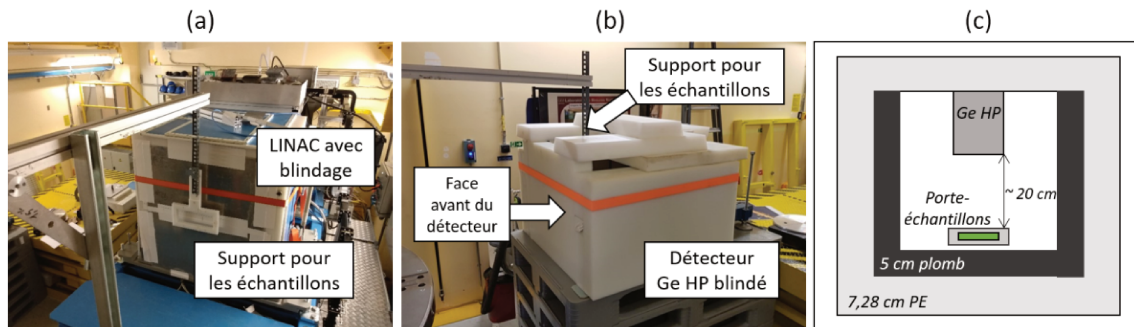


FIGURE 2.32 – Position (a) d’irradiation, (b) de comptage et (c) schéma du dispositif de détection pour les échantillons d’actinides en 2019.

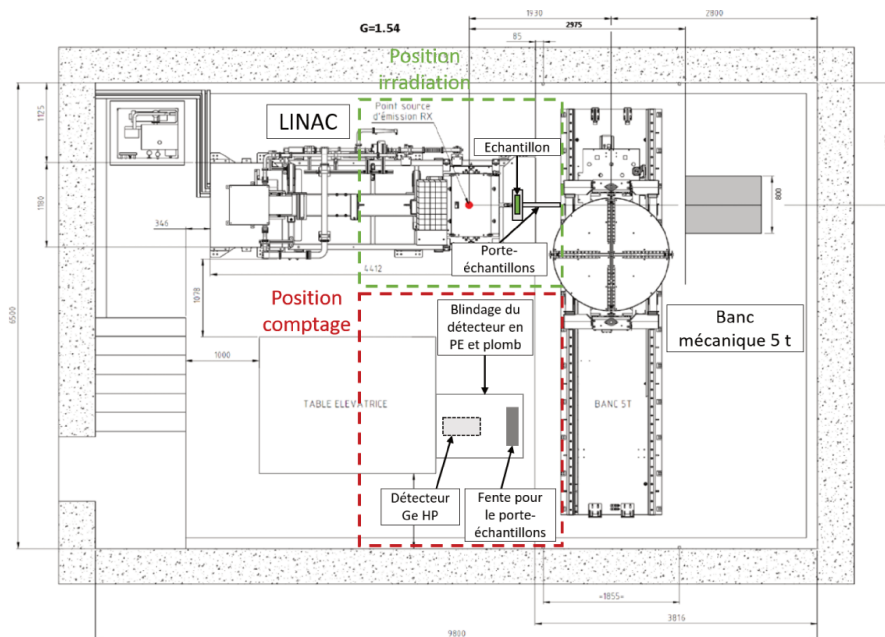


FIGURE 2.33 – Configuration de la cellule CINPHONIE lors de la campagne de 2019.

Lors des expériences de 2021, le détecteur a été rapproché à 1,04 m du centre du porte colis dans l'optique des mesures effectuées avec une matrice en béton. Le détecteur Ge HP n'était pas protégé en face avant lors de la mesure du bruit de fond actif pour pouvoir effectuer sa comparaison avec et sans matrice en béton. Des rondelles de plomb de 50 mm ont été ajoutées autour du détecteur. Le dispositif de détection dans ce cas est montré sur la Figure 2.34. À noter que les détecteurs utilisés en 2019 et en 2021 étaient différents (voir Tableau 2.3 et Tableau 2.5), ce qui peut induire des disparités dans les produits d'activation créés dans les composants du détecteur et qui seront ensuite observés dans les spectres de gamma retardés.

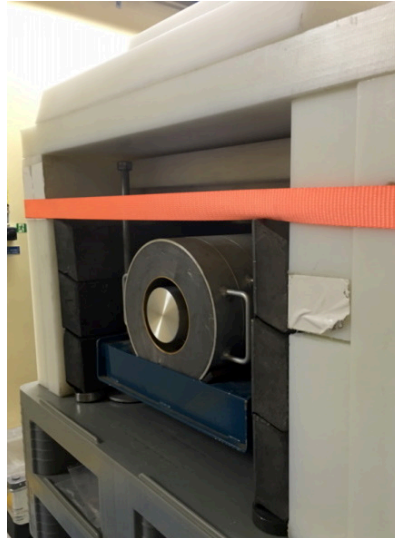


FIGURE 2.34 – Dispositif de détection pour la mesure du bruit de fond actif lors de la campagne de 2021.

Les bruits de fond actifs de la cellule CINPHONIE vide en 2019 et 2021 sont montrés respectivement sur les Figures 2.35 et 2.36. Les différences dans la configuration de détection ainsi que l'augmentation conjointe de l'énergie et de l'intensité du faisceau du LINAC entre les campagnes de 2019 et 2021 permettent d'expliquer l'augmentation conséquente du bruit de fond actif et du nombre de pics présents dans ce dernier en 2021.

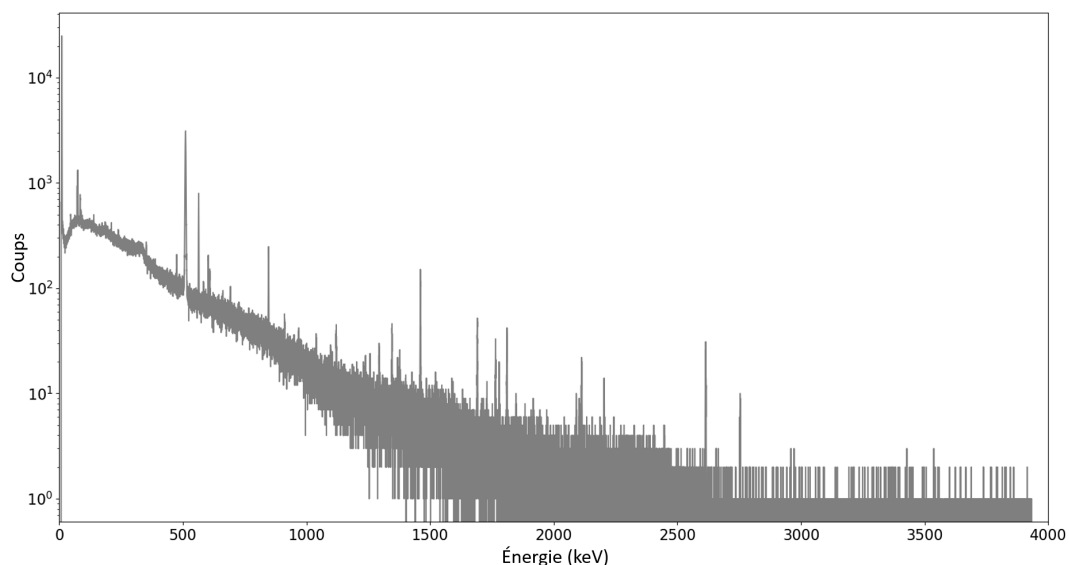


FIGURE 2.35 – Bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE vide en 2019.

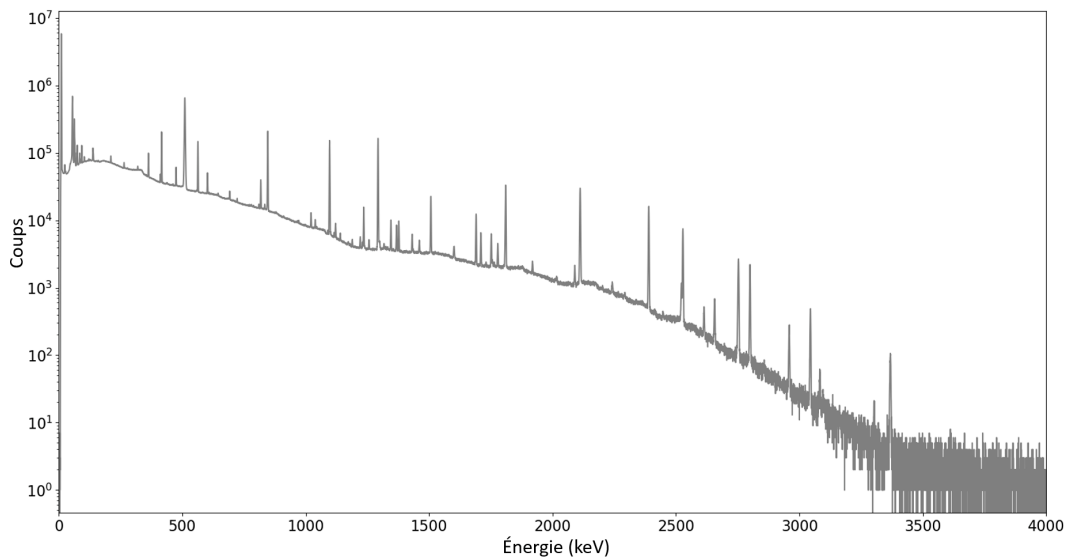


FIGURE 2.36 – Bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE vide en 2021.

Les pics présents dans le bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE vide en 2021 sont listés dans le Tableau 2.15 et le Tableau 2.16, une distinction est faite entre les raies issues du système de détection et des éléments de structure dans la cellule [112].

Le nombre de pics attribués au ^{77}Ge est très important. Il est formé par capture neutronique sur le ^{76}Ge , composant le cristal de germanium du détecteur à 7,7%. On observe également des pics somme issus de l'émission de photons en cascade dans le cristal. Bon nombre de pics sont attribuables au $^{116\text{m}}\text{In}$ formé par capture neutronique sur ^{115}In (voir la section efficace sur la Figure 2.28). L'indium est probablement présent dans les soudures à proximité immédiate du cristal de germanium du détecteur ORTEC GMX50. C'est également le cas pour le détecteur CANBERRA utilisé lors de la campagne de 2019, mais l'observation de l'activation de l'indium est beaucoup moins marquée compte tenu de l'intensité du faisceau du LINAC moins importante et du blindage installé devant le détecteur. Enfin, de nombreux pics sont issus de l'activation de l'antimoine, et plus particulièrement du ^{124}Sb . L'antimoine entre dans la composition du plomb utilisé pour le blindage du détecteur (briques ou rondelles entourant le capot, *cf.* Figure 2.34). Afin de réduire l'activation par les neutrons de basse énergie dans ce type d'expérience, une solution consisterait à ajouter un matériau neutrophage (par exemple du cadmium ou du B_4C) entre le polyéthylène du blindage du détecteur et le plomb. De cette façon les neutrons thermalisés dans le polyéthylène seraient absorbés avant d'atteindre le cristal de germanium ou le plomb dans lequel l'antimoine s'active. Il pourra également être envisagé d'ajouter une couche de blindage en dessous du détecteur pour limiter le flux de neutrons réfléchi sur les murs et le sol de la casemate. Enfin, un blindage amovible devant le détecteur (présent pendant l'irradiation et en position de retrait pendant le comptage) pourrait être conçu afin de limiter l'exposition de sa face avant lors du tir de l'accélérateur sans perdre du signal lors de la détection.

TABLEAU 2.15 – Identification des raies de produits d’activation provenant du système de détection lors de la campagne de 2021 et comparaison avec la campagne de 2019.

Énergie (keV)	Isotope	Présence en 2019 ?	Énergie (keV)	Isotope	Présence en 2019 ?
211	⁷⁷ Ge		1235	⁷⁷ Ge	
215	⁷⁷ Ge		1248	⁷⁷ Ge (pic somme 614 + 634 keV)	
264	⁷⁷ Ge		1257	¹²² Sb	
378	⁷⁷ Ge (pic somme 159 + 219 keV)		1294	^{116m} In	✓
410	⁷⁷ Ge (pic somme 195 + 215 keV)		1297	⁷⁷ Ge (pic somme 583 + 714 keV)	
417	^{116m} In		1318	⁷⁷ Ge	
564	¹²² Sb	✓	1326	¹²⁴ Sb	
596	⁷⁷ Ge (pic somme 156 + 439 keV)		1345	⁷⁷ Ge (pic somme 399 + 946 keV)	✓
602	¹²⁴ Sb	✓	1356	⁷⁷ Ge	
635	⁷⁷ Ge		1368	¹²⁴ Sb	✓
645	¹²⁴ Sb		1409	^{77m} Ge et ⁷⁷ Ge (pic somme 611 + 798 keV)	
693	¹²² Sb	✓	1432	^{116m} In (pic somme 138 + 1294 keV)	
722	¹²⁴ Sb	✓	1436	¹²⁴ Sb	
739	⁷⁷ Ge (pic somme 156 + 582 keV)		1508	^{116m} In	
780	^{116m} In		1601	⁷⁷ Ge (pic somme 634 + 966 keV)	
789	⁷⁷ Ge		1690	¹²⁴ Sb	✓
819	^{116m} In		1710	⁷⁷ Ge	
882	⁷⁷ Ge		1753	^{116m} In	
898	⁷⁷ Ge (pic somme 367 + 531 keV)		1757	^{116m} In	
907	⁷⁷ Ge (pic somme 338 + 569 keV)		1778	²⁸ Al	✓
1022	⁷⁷ Ge		2017	¹²⁴ Sb	
1040	⁷⁷ Ge (pic somme 264 + 775 keV)		2090	¹²⁴ Sb	✓
1090	⁷⁷ Ge (pic somme 215 + 875 keV)		2112	^{116m} In	✓
1097	^{116m} In	✓	2391	^{116m} In (pic somme 1097 + 1294 keV)	
1140	¹²² Sb		2528	^{116m} In (pic somme 417 + 2112 keV)	
1189	⁷⁷ Ge (pic somme 215 + 974 keV)		2801	^{116m} In (pic somme 1294 + 1507 keV)	
1222	⁷⁷ Ge (pic somme 557 + 665 keV)		3045	^{116m} In (pic somme 1294 + 1752 keV)	
1231	⁷⁷ Ge (pic somme 264 + 966 keV)				

TABLEAU 2.16 – Identification des raies de produits d'activation provenant des éléments de structure ou du bruit de fond naturel de la cellule CINPHONIE lors de la campagne de 2021 et comparaison avec la campagne de 2019.

Énergie (keV)	Isotope	Présence en 2019 ?	Énergie (keV)	Isotope	Présence en 2019 ?
319	^{51}Cr		1757	^{57}Ni	
364	^{214}Bi		1764	^{214}Bi	✓
388	^{214}Bi		1810	^{56}Mn	✓
474	^{214}Bi	✓	1919	^{57}Ni	
609	^{214}Bi	✓	2010	^{214}Bi	
810	^{58}Co		2112	^{56}Mn	✓
835	^{54}Mn		2205	^{214}Bi	✓
846	^{56}Mn	✓	2243	^{24}Na (simple échappement 2754 keV)	
935	^{214}Bi		2293	^{214}Bi	
1046	^{57}Ni		2449	^{214}Bi	
1116	^{65}Zn		2523	^{56}Mn	
1121	^{214}Bi	✓	2614	^{208}Tl	✓
1174	^{60}Co		2656	^{56}Mn	
1332	^{60}Co		2754	^{24}Na	✓
1377	^{57}Ni	✓	2959	^{56}Mn	
1460	^{40}K	✓	3084	^{49}Ca	
1731	^{57}Ni		3369	^{56}Mn	

En ce qui concerne les pics de bruit de fond actif qui ne sont pas issus du système de détection, la plupart provient de l'activation de l'acier présent dans la cellule CINPHONIE, en particulier du banc mécanique très massif de translation-rotation des colis jusqu'à 5 tonnes. À noter qu'aucune raie de bruit de fond actif n'est observée au-dessus de 3,4 MeV. Le récapitulatif des produits d'activation observés dans la cellule vide est donné dans le Tableau 2.17.

2.3.2 Bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE avec une galette en béton

Lors de la campagne expérimentale de 2021, une galette en béton a été utilisée pour réaliser des expériences avec une matrice afin d'étudier la correction des effets de matrice et de localisation. Cette galette en béton mesure 1 m de diamètre et 15 cm d'épaisseur. Elle est entourée par une virole en acier de 3 mm d'épaisseur. Elle possède également des inserts en béton dans lesquels les échantillons d'actinides peuvent être placés. La galette en béton est montrée sur la Figure 2.37.

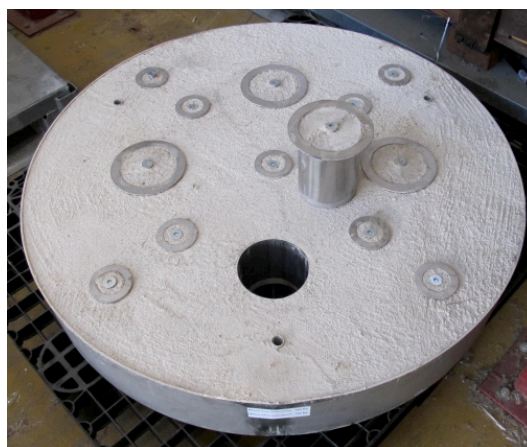


FIGURE 2.37 – Photographie de la galette de béton utilisée pour les expériences avec une matrice, décrites dans le Chapitre 4.

TABLEAU 2.17 – Produits d’activation observés dans le bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE vide et caractéristiques associées.

Isotope	Demi-vie	Production	Origine présumée
^{77}Ge	11,2 h	(n, γ)	Cristal du détecteur
^{116m}In	54,6 min	(n, γ)	Soudures du détecteur
^{124}Sb	60,2 jours	(n, γ)	Blindage plomb
^{122}Sb	2,7 jours	(γ ,n)	Blindage plomb
^{28}Al	2,2 min	(n, γ)	Capot détecteur
^{56}Mn	2,6 h	(n, γ)	Acier banc mécanique
^{54}Mn	312,2 jours	(γ ,n)	Acier banc mécanique
^{57}Ni	1,5 jours	(γ ,n)	Acier banc mécanique
^{51}Cr	27,7 jours	(n, γ)	Acier banc mécanique
^{58}Co	70,8 jours	(γ ,n)	Acier banc mécanique
^{60}Co	5,3 ans	(n, γ)	Acier banc mécanique
^{65}Zn	244,0 jours	(n, γ)	Acier banc mécanique
^{24}Na	14,9 h	(n, γ)	Béton
^{49}Ca	8,7 min	(n, γ)	Béton
^{208}Tl	3,1 min	Naturel	Bruit de fond naturel des murs (chaîne du ^{232}Th)
^{40}K	$1,25 \times 10^9$ ans	Naturel	Bruit de fond naturel des murs
^{214}Bi	19,8 min	Naturel	Bruit de fond naturel des murs (chaîne de l' ^{238}U)

L’utilisation de cette matrice en béton ajoute une contribution supplémentaire au bruit de fond actif, montré sur la Figure 2.38.

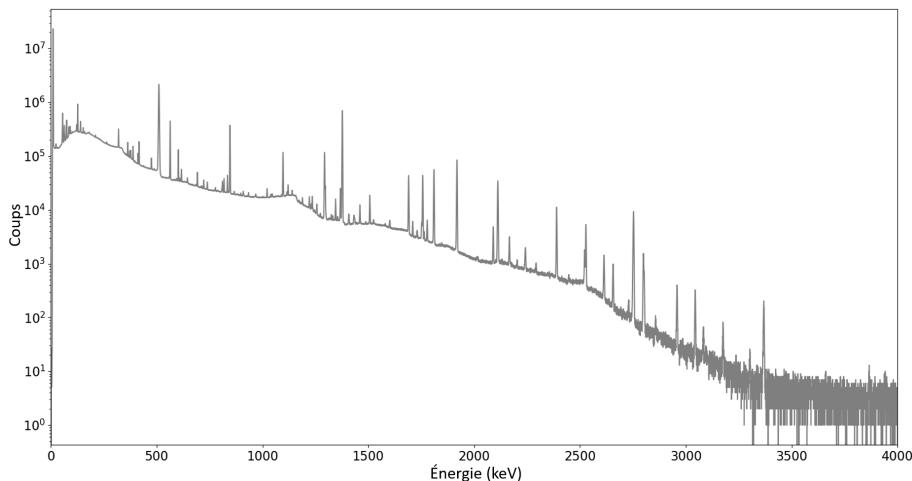


FIGURE 2.38 – Bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE avec la galette en béton, enregistré pendant 68 h après 2 h d’irradiation et 23 s de refroidissement.

Les pics présents dans ce bruit de fond actif sont ceux listés dans la section dédiée au bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE vide (Tableau 2.15 et Tableau 2.16) ainsi que ceux décrits dans le Tableau 2.18. Les raies du Tableau 2.16 attribuées à l’acier du banc mécanique et au béton sont également peuplées par les mêmes produits d’activation créés dans l’acier de la virole et le béton de la galette.

TABLEAU 2.18 – Identification des raies de produits d’activation provenant de la galette en béton.

Énergie (keV)	Isotope	Énergie (keV)	Isotope
373	^{43}K	2062	^{63}Zn
378	^{53}Fe	2127	^{34m}Cl
450	^{63}Zn	2335	^{63}Zn
489	^{47}Ca	2495	^{63}Zn
594	^{43}K	2535	^{63}Zn
617	^{43}K	2695	^{63}Zn
669	^{63}Zn	2716	^{63}Zn
962	^{63}Zn	2731	^{57}Ni
1274	^{22}Na	2780	^{63}Zn
1368	^{24}Na	2804	^{57}Ni
1412	^{63}Zn	3084	^{49}Ca
1524	^{42}K	3177	^{57}Ni
1547	^{63}Zn	3304	^{34m}Cl
2027	^{63}Zn		

Le récapitulatif des produits d’activation observés dans la cellule avec la galette de béton est donné dans le Tableau 2.19.

TABLEAU 2.19 – Produits d’activation supplémentaires observés dans le bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE avec la galette en béton et caractéristiques associées.

Isotope	Demi-vie	Production	Origine présumée
^{63}Zn	38,5 min	(γ ,n)	Virole de la galette
^{53}Fe	8,5 min	(γ ,n)	Virole de la galette
^{57}Ni	1,5 jours	(γ ,n)	Virole de la galette
^{24}Na	14,9 h	(n, γ)	Béton de la galette
^{22}Na	2,6 ans	(γ ,n)	Béton de la galette
^{42}K	12,4 h	(n, γ)	Béton de la galette
^{43}K	22,2 h	(γ ,p)	Béton de la galette
^{47}Ca	4,5 jours	(γ ,n)	Béton de la galette
^{49}Ca	8,7 min	(n, γ)	Béton de la galette
^{34m}Cl	32,1 min	(γ ,n)	Béton de la galette

Le bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE avait été estimé par simulation lors d’études de faisabilité préliminaires effectuées en 2016 portant sur la quantification de la masse fissile dans les colis 870 L [70] (voir aussi dans le Chapitre 1, Section 1.2.3.2.1). Il avait été sous-estimé compte-tenu des difficultés à simuler un bruit de fond actif réaliste, car très lié à la composition détaillée des matériaux de l’environnement, du système de mesure et du colis. D’une part, l’activation neutronique des composants du système de détection (blindage et détecteur) n’avait pas été prise en compte. Les expériences effectuées, particulièrement lors de la campagne de 2021, montrent que cette contribution est très importante. Les produits d’activation observés peuvent compliquer, voire rendre impossible, l’exploitation de certaines raies de rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission. Cette activation pourra néanmoins être réduite à l’avenir grâce à l’emploi de matériaux neutrophages positionnés judicieusement en aval des matériaux de thermalisation neutronique. D’autre part, la composition de l’acier présent dans la cellule CINPHONIE n’est pas connue précisément. De nombreux composants minoritaires sont présents dans l’acier en plus du manganèse qui avait été pris en compte avec l’isotope ^{56}Mn . On peut citer notamment le nickel qui forme via l’isotope ^{57}Ni une signature prépondérante de l’activation de l’acier dans CINPHONIE. Enfin, le béton, présent également dans les colis 870 L, est une source de multiples produits d’activation, dont les rayonnements gamma varient en fonction de sa composition. Cela met en exergue la difficulté d’estimer un bruit de fond actif uniquement par simulation et l’importance que revêtent des mesures expérimentales pour cette tâche.

2.4 Conclusion du chapitre

Au cours de ce deuxième chapitre, le faisceau du LINAC Saturne et le bruit de fond actif associé ont été caractérisés. Tout d'abord, le dispositif d'irradiation et son blindage ont été présentés. Ensuite, une méthode de caractérisation du spectre de *Bremsstrahlung* par activation photonique de matériaux a été décrite. Celle-ci nous a permis d'évaluer les distributions en énergie des électrons du LINAC, le spectre de *Bremsstrahlung* et le flux de photons associé pour les campagnes expérimentales de 2019 et 2021. L'énergie de fin de faisceau était de 15,8 MeV et de 17,5 MeV lors des campagnes de mesure de 2019 et 2021, respectivement. De la même façon que l'énergie, l'intensité du faisceau a augmenté entre les deux campagnes. Cela se traduit par une augmentation du flux de photons, passant ainsi de $(1,79 \pm 0,25) \times 10^7$ photons.cm⁻².impulsion⁻¹ en 2019 à $(2,54 \pm 0,37) \times 10^8$ photons.cm⁻².impulsion en 2021, à 1 m de la cible du LINAC dans l'axe. Connaissant les caractéristiques du faisceau de photons, le flux de photoneutrons produits lors de l'irradiation a été caractérisé via l'activation neutronique de matériaux. La comparaison entre les résultats expérimentaux et les simulations nous a permis de valider le modèle MCNP du LINAC, du collimateur et du blindage associé et de confirmer l'efficacité du blindage neutronique via l'absorption des neutrons thermiques dans le cadmium. Ces résultats sont un prérequis à un certain nombre d'études menées par la suite. En effet, ils ont été utilisés notamment pour la mesure des rendements de photofission de divers actinides présentée dans le chapitre suivant. Enfin, le bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE vide et avec une galette en béton a été analysé. Cela a mis en évidence la présence de nombreux produits d'activation issus du dispositif de détection (⁷⁷Ge, ^{116m}In et ¹²⁴Sb) qui n'avaient pas été identifiés lors des études préliminaires par simulation. Ce bruit de fond pourra être réduit à l'avenir en rajoutant un matériau neutrophage à l'intérieur du blindage en polyéthylène autour du détecteur. Les expériences conduites en 2021 ont également souligné l'activation prépondérante de l'acier dans la cellule CINPHONIE, notamment via la présence des raies du ⁵⁶Mn et du ⁵⁷Ni. Enfin, l'analyse du bruit de fond actif avec la galette en béton a montré la présence de produits d'activation issus de réactions avec certains composants du béton, ce qui nous donne un meilleur aperçu des raies qui seront potentiellement présentes suite à l'irradiation d'un colis de 870 L contenant lui-même une enveloppe de 5 à 10 cm de béton en périphérie. Les données du bruit de fond actif qui ont été obtenues avec la galette de béton seront par ailleurs exploitées dans le dernier chapitre pour calculer les limites de détection en masse d'actinides, extrapolées au cas d'un colis de 870 L.

Chapitre 3

Mesure des rendements cumulatifs des produits de photofission pour ^{235}U , ^{238}U et ^{239}Pu et différenciation dans des mélanges d'actinides

3.1 Introduction du chapitre

Au cours du Chapitre 2, la méthode de caractérisation du faisceau du LINAC a été détaillée. Elle nous a permis de déterminer une distribution en énergie des électrons et un flux de photons de *Bremsstrahlung* adéquats pour chaque campagne expérimentale, en 2019 et en 2021. Ces données sont utilisées pour la mesure des rendements de photofission cumulatifs pour différents actinides, dont le principe et les résultats sont décrits dans ce chapitre. Comme mentionné dans le premier chapitre bibliographique, les taux de production des produits de photofission sont des données relativement rares dans la littérature. Pourtant, ces informations sont essentielles pour le développement d'une méthode de différenciation des actinides. Nous proposons ici la mesure de taux de production de produits de photofission de ^{238}U , ^{235}U et du ^{239}Pu . On notera que, comme dans le chapitre précédent, les résultats obtenus sont issus des deux campagnes expérimentales de 2019 et 2021.

3.2 Dispositif expérimental

3.2.1 Échantillons d'actinides et configurations d'irradiation

3.2.1.1 Campagne expérimentale de 2019

Lors de la campagne expérimentale de 2019, nous disposions de deux échantillons d'actinides : un échantillon d'Uranium Appauvri (UA) et un échantillon d'Uranium Hautement Enrichi (UHE). Ils sont décrits dans le Tableau 3.1. L'échantillon d'UA, composé à 99,7 % d' ^{238}U , est utilisé pour mesurer les taux de production des produits de photofission de cet actinide. L'échantillon d'UHE, constitué de 4 plaquettes juxtaposées, identiques en termes de géométrie et composées à plus de 90 % d' ^{235}U nous permet quant à lui de mesurer les taux de production des produits de photofission de ^{235}U en soustrayant la contribution de ^{238}U apprise au préalable. Les détails de la méthode de calcul des taux de production sont donnés dans la Section 3.3.

Le LINAC fonctionnant en mode dégradé en 2019, les échantillons sont positionnés sur un support permettant de les placer au plus près de la cible de tungstène, comme montré sur la Figure 3.1.

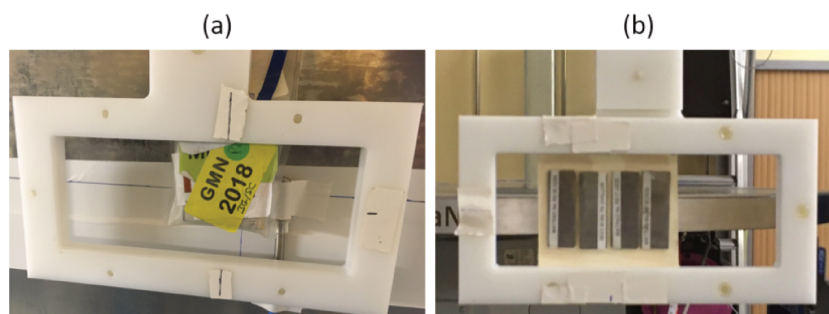


FIGURE 3.1 – Échantillons (a) d'UA et (b) d'UHE sur leurs supports lors de la campagne de 2019.

TABLEAU 3.1 – Description des échantillons d'actinides utilisés lors de la campagne expérimentale de 2019.

Uranium		
Échantillon	UA	UHE (4 plaquettes)
Masse	$m \approx 200 \text{ g}^*$	$m \approx 0,4 \text{ g}^*$
Fraction d' ^{235}U	0,3 %	> 90 %
Composition	Uranium métallique	Cœur fissile composé de barrettes d'uranium métallique et de Zircaloy alternées, le tout entre deux plaques de Zircaloy
Dimensions	Épaisseur de 1 cm	Épaisseur < 1 mm
Densité	$18,96 \text{ g.cm}^{-3}$	Cœur fissile : $18,96 \text{ g.cm}^{-3}$ Zircaloy : $6,56 \text{ g.cm}^{-3}$
Distance entre la cible du LINAC et l'échantillon	44 cm	46 cm
Durée d'irradiation	2 h	2 h
Fréquence d'irradiation	10 Hz	100 Hz

*Les masses d'actinides et l'enrichissement ne peuvent être données précisément pour des raisons de confidentialité.

L'échantillon d'UA étant très dense ($18,96 \text{ g.cm}^{-3}$) et possédant une épaisseur de 1 cm, il est soumis à des effets d'autoprotection (atténuation du faisceau de photons interrogateur) et d'auto-absorption (atténuation des rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission). Ces effets doivent être pris en compte pour permettre la bonne estimation de l'efficacité de détection. En ce qui concerne la phase d'irradiation, le taux de photofission n'est pas homogène dans l'épaisseur de l'échantillon. Afin de représenter ce phénomène, le taux de photofission a été simulé dans l'échantillon d'UA avec MCNP et une source de photons de *Bremsstrahlung* correspondant à la configuration du LINAC de 2019 (distribution semi-gaussienne des électrons d'énergie maximale 15,8 MeV et de largeur à mi-hauteur de 1,5 MeV, voir Chapitre 2, Section 2.2.1.2). Le taux de photofission a été estimé dans le lingot de 1 cm d'épaisseur, séparé en 20 tranches de 0,5 mm chacune. L'évolution du taux de photofission dans l'épaisseur de l'échantillon d'UA est représentée sur la Figure 3.2. Le taux de photofission sur la face avant de l'échantillon est 2,6 fois plus élevé que sur la face arrière. De plus, il faut tenir compte du profil transversal du flux de photons de *Bremsstrahlung* qui entraîne une inhomogénéité surfacique du taux de photofission, comme montré sur la Figure 3.3. Ces deux effets conduisent à une émission de rayonnements gamma retardés hétérogène dans l'échantillon d'UA qui sera prise en compte dans la simulation de l'efficacité de détection avec MCNP.

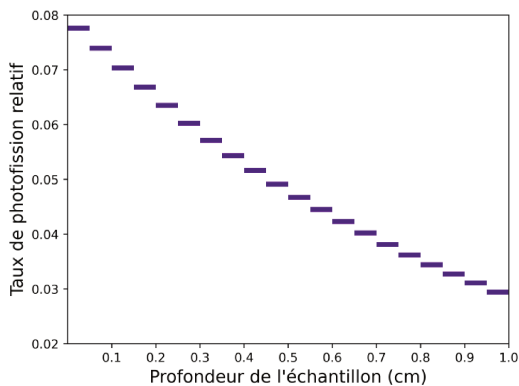


FIGURE 3.2 – Évolution du taux de photofission dans l'épaisseur de l'échantillon d'UA.

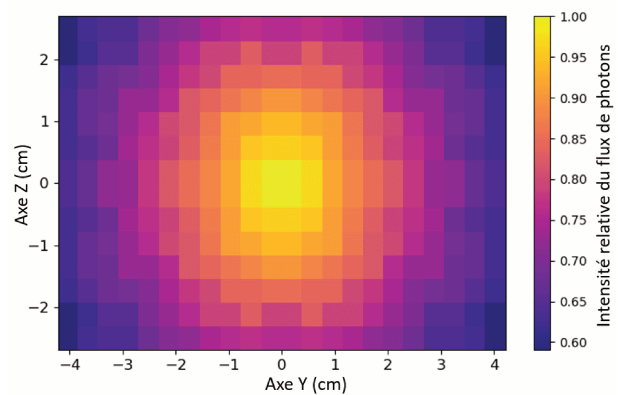


FIGURE 3.3 – Intensité du flux de photons au niveau de la surface des échantillons, située à environ 45 cm de la cible du LINAC.

3.2.1.2 Campagne expérimentale de 2021

En 2021, nous disposons du même échantillon d'UA qu'en 2019, par contre l'échantillon d'UHE utilisé lors de cette deuxième campagne est environ 20 fois plus massif que le précédent pour obtenir une meilleure statistique de comptage des rayonnements gamma retardés. Enfin, nous avons eu accès à un échantillon de plutonium pour mesurer les taux de production des produits de photofission du ^{239}Pu . Les mesures avec ce dernier échantillon ont été effectuées dans deux configurations différentes (notées « Pu1 » et « Pu2 ») correspondant à des distances différentes par rapport à la cible du LINAC. Les trois échantillons mentionnés sont décrits dans le Tableau 3.2.

TABLEAU 3.2 – Description des échantillons d'actinides utilisés lors de la campagne expérimentale de 2019.

Uranium		
Échantillon	UA	UHE
Masse	$m \approx 200 \text{ g}^*$	$m \approx 10 \text{ g}^*$
Fraction d' ^{235}U	0,3 %	> 90 %*
Composition	Uranium métallique	Cœur en uranium métallique entre deux plaques de Zircaloy
Dimensions	Épaisseur de 1 cm	Épaisseur < 1 mm
Densité	$18,96 \text{ g.cm}^{-3}$	Cœur fissile : $18,96 \text{ g.cm}^{-3}$ Zircaloy : $6,56 \text{ g.cm}^{-3}$
Distance entre la cible du LINAC et l'échantillon	102 cm	102,7 cm
Durée d'irradiation	2 h	2 h
Fréquence d'irradiation	200 Hz	200 Hz

Plutonium	
Échantillon	Pu
Masse	$m \approx 1,5 \text{ g}^*$
Composition isotopique	^{239}Pu : 83 %* ; ^{240}Pu : 12 %*
Forme chimique	Poudre de PuO_2 mélangée à de la résine
Densité	$1,98 \text{ g.cm}^{-3}$
Distance entre la cible du LINAC et l'échantillon	Pu 1 : 45,4 cm ; Pu 2 : 115,4 cm
Durée d'irradiation	2 h
Fréquence d'irradiation	200 Hz

*Les masses d'actinides et la composition isotopique ne peuvent être données précisément pour des raisons de confidentialité.

Des supports imprimés en 3D ont été réalisés pour positionner les échantillons d'uranium sur une potence placée sur le banc mécanique de la cellule d'irradiation (voir Figure 3.4.a et Figure 3.4.b). Le but est de les positionner plus loin de la cible du LINAC qu'en 2019 (*e.g.* 102 cm en 2021 contre 44 cm en 2019 pour l'UA) pour s'adapter à l'augmentation de l'intensité du LINAC entre ces deux campagnes expérimentales (*cf.* Chapitre 2, Section 2.2.1) et limiter le temps mort de l'électronique. En effet, reculer les échantillons a pour conséquence de diminuer le taux de photofission lors de l'irradiation ainsi que de réduire l'efficacité de détection lors de la phase de comptage en se situant plus loin du détecteur germanium haute-pureté (Ge HP). L'échantillon de plutonium étant quant à lui beaucoup moins massif que les échantillons d'uranium, il a été placé sur le même support que celui utilisé en 2019 (voir Figure 3.4.c) pour la mesure « Pu1 » au plus près du LINAC et du détecteur. En ce qui concerne la mesure « Pu2 » réalisée plus loin du LINAC et du détecteur, l'échantillon de plutonium était placé de façon similaire aux échantillons d'uranium, *i.e.*, maintenu par une potence placée sur le banc mécanique.

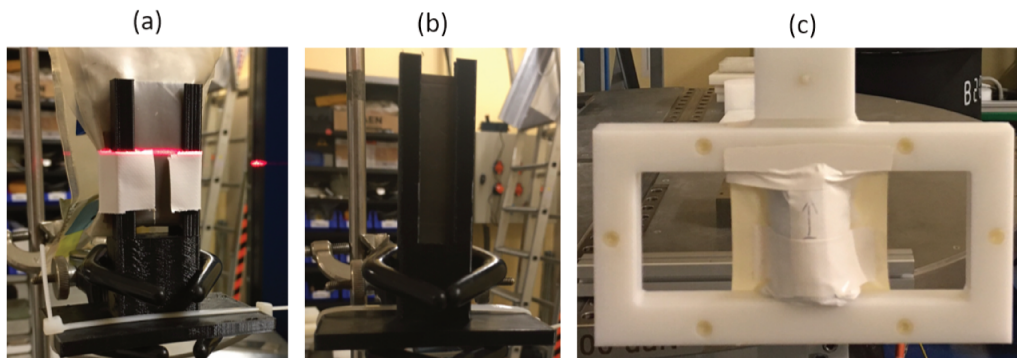


FIGURE 3.4 – Échantillons (a) d'uranium appauvri, (b) d'uranium hautement enrichi et (c) de plutonium sur leurs supports respectifs lors de la campagne de 2021.

3.2.2 Dispositifs de détection

3.2.2.1 Campagne expérimentale de 2019

Les rayonnements gamma retardés de photofission émis par les échantillons d'actinides en 2019 ont été mesurés avec un détecteur germanium haute pureté GR3018 (MIRION/CANBERRA). Il s'agit d'un détecteur coaxial de type n et de 30 % d'efficacité relative. Bien que plus résistant aux neutrons incidents qu'avec un cristal de type p, il est entouré d'un blindage composé de 5 cm de plomb et de 7,28 cm de polyéthylène, comme montré sur la Figure 3.5, afin de le protéger du bruit de fond gamma d'activation et du flux de photoneutrons rapides qui peuvent facilement détériorer la résolution du cristal. Le schéma des composants du détecteur est donné sur la Figure 3.6.



FIGURE 3.5 – Détecteur germanium GR3018 et son blindage neutronique.

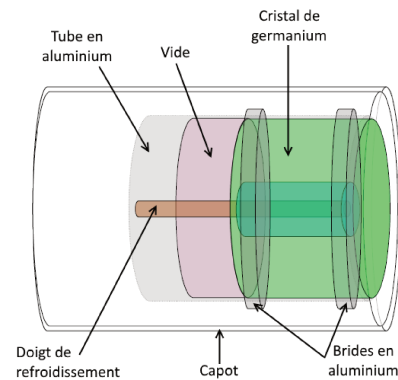


FIGURE 3.6 – Schéma du détecteur germanium GR3018.

Les échantillons d'UA et d'UHE sur leur support (voir Figure 3.1) sont positionnés entre le blindage et le détecteur, respectivement à 20 cm et 22 cm de la face avant du Ge HP. Les schémas des configurations de détection sont disponibles sur la Figure 3.7.

L'efficacité de détection des rayonnements gamma retardés est une donnée essentielle pour la mesure des taux de production des produits de photofission. Elle a été déterminée pour chaque échantillon sur une large plage en énergie à l'aide de simulations MCNP. L'inhomogénéité de l'émission des gamma retardés mentionnée dans la Section 3.2.1.1 est prise en compte via la création d'une source de photons dans les échantillons d'uranium ayant la même distribution spatiale que le taux de photofission. Les courbes d'efficacité totale de détection en fonction de l'énergie du rayonnement gamma émis dans les échantillons d'uranium sont données sur la Figure 3.8. L'efficacité de détection pour l'UA est plus faible que celle pour l'UHE à cause des effets d'auto-atténuation dus à l'épaisseur de l'échantillon d'UA (1 cm) combinée à sa masse volumique élevée ($18,96 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$). En particulier, l'auto-absorption des rayonnements gamma est d'autant plus importante que leur énergie est faible. Au-delà de 1500 keV, la différence d'efficacité de détection entre les deux types d'échantillons est faible et le ratio reste constant. Ces courbes sont utilisées pour l'extraction des aires nettes des pics de rayonnements retardés avec le logiciel MAGIX (voir Section 3.3.3).

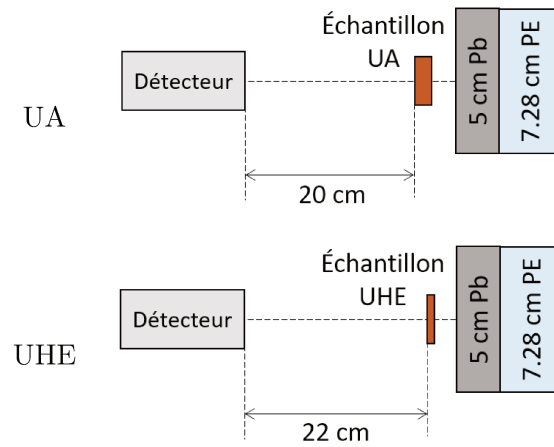


FIGURE 3.7 – Configurations de détection pour les échantillons d'uranium irradiés en 2019.

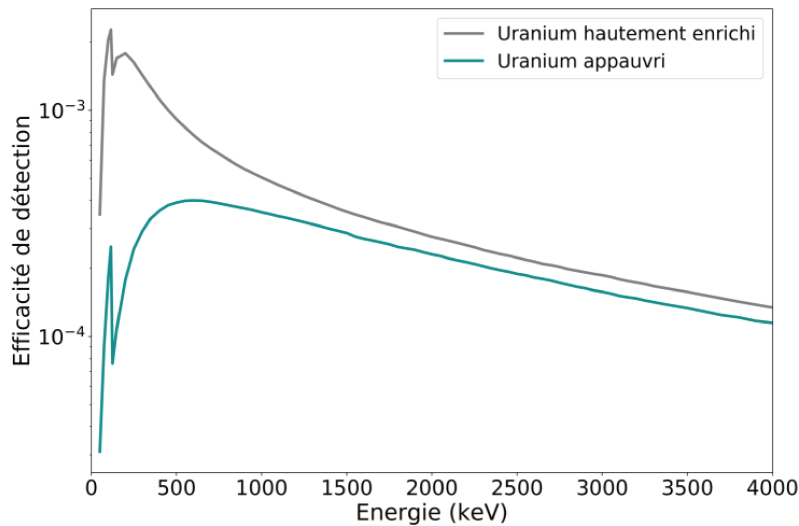


FIGURE 3.8 – Courbes d'efficacité de détection pour les échantillons d'uranium irradiés en 2019.

Le détecteur GeHP possède un préamplificateur à remise à zéro par transistor et est couplé à un analyseur de signal numérique LYNX (MIRION/CANBERRA). L'enregistrement des spectres est effectué avec le logiciel Genie2000 (MIRION/CANBERRA). La chaîne de spectrométrie gamma a fait l'objet d'une optimisation des deux paramètres de mise en forme trapézoïdale du signal avant le début de la campagne expérimentale : le temps de montée (*rise-time*) et le plateau (*flat-top*) du trapèze sont respectivement réglés à $5,6 \mu\text{s}$ et $0,8 \mu\text{s}$ en 2019, conduisant à une résolution en énergie du détecteur de $1,8 \text{ keV}$ FWHM pour la raie à $1332,5 \text{ keV}$ du ^{60}Co à faible taux de comptage. Les échantillons d'uranium sont placés à environ 20 cm du détecteur (voir Figure 3.7) pour maintenir le temps mort du système de détection complet en dessous de 30% . Le temps mort (DT pour *dead time*) est donné en pourcentage et quantifie la différence relative entre le temps actif (LT pour *live time*) et le temps réel (RT pour *real time*) par rapport au temps réel, soit $DT(\%) = \frac{RT-LT}{RT} \times 100$. Dans le cadre de l'acquisition des spectres gamma retardés émis par des produits de fission, le taux de comptage, et donc le temps mort, sont amenés à varier très rapidement avec le temps juste après l'arrêt de l'irradiation. À titre d'exemple, le temps mort après 30 s de refroidissement atteint $29,7\%$ pour l'échantillon d'UA et $4,2\%$ pour l'échantillon d'UHE, contre respectivement 14% et $2,2\%$ au bout de 15 min . Des acquisitions séquentielles ont donc été effectuées, avec une réinitialisation du spectre toutes les 60 s et 180 s , respectivement pour l'UA et l'UHE. Ces spectres bruts ont ensuite été corrigés du temps mort en post-traitement, en multipliant les comptages par un facteur $k = \frac{RT}{LT}$ dans chaque spectre de 60 s ou 180 s , permettant de compenser la perte d'information causée par le temps mort. Les spectres corrigés obtenus pour chaque échantillon sont ensuite sommés pour créer

des spectres avec des temps de refroidissement et de comptage adaptés à l'observation des différents produits de photofission possédant des périodes radioactives variées. Les caractéristiques de la phase de détection sont résumées dans le Tableau 3.3.

TABLEAU 3.3 – Caractéristiques de la phase de détection pour les expériences de 2019.

Mesure	UA	UHE
Temps de refroidissement	30 s	30 s
Temps mort initial	29,7 %	4,2 %
Durée d'une acquisition	60 s	180 s
Temps de comptage total	67,6 h	22,1 h

3.2.2.2 Campagne expérimentale de 2021

Lors de la campagne expérimentale de 2021, les rayonnements gamma retardés ont été mesurés avec un détecteur germanium haute pureté GMX50-83-1-PL (ORTEC). Il s'agit d'un détecteur coaxial de type n de 50 % d'efficacité relative. Un blindage neutronique composé de plomb et/ou de polyéthylène a été installé autour du détecteur en fonction de la configuration de mesure (voir Figure 3.11). La photo du détecteur est disponible sur la Figure 3.9. Ce détecteur a fait l'objet d'une modélisation optimisée avec MCNP via l'ajustement de ses composants pour correspondre au mieux aux données observées expérimentalement à l'aide de sources de référence. Le schéma du modèle final du Ge HP GMX50-83-1-PL est disponible sur la Figure 3.10.



FIGURE 3.9 – Détecteur ORTEC GMX50-83-1-PL et son réservoir d'azote liquide.

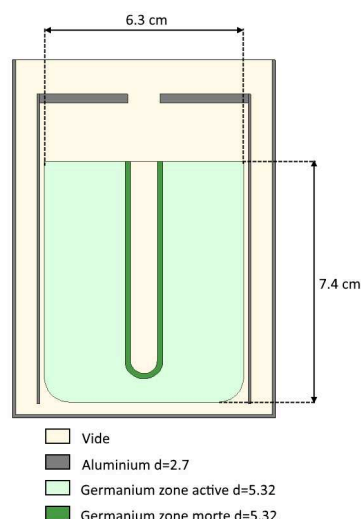


FIGURE 3.10 – Schéma du détecteur ORTEC GMX50-83-1-PL.

Les schémas des différentes configurations de détection sont donnés sur la Figure 3.11. Une épaisseur de 7,28 cm de polyéthylène (PE) a été interposée entre la face avant du détecteur et les échantillons d'uranium afin de réduire le taux de comptage, en plus d'offrir au cristal une protection contre les photoneutrons produits lors de l'irradiation. Dans le cadre des mesures effectuées avec l'échantillon de plutonium, une feuille de cadmium a été placée sur la face avant du détecteur pour couper l'émission passive de l'échantillon, due en grande partie à la présence de ^{241}Am émettant une raie gamma intense à 59,5 keV. Deux mesures avec l'échantillon de plutonium ont été effectuées. La mesure « Pu 1 » a été faite au plus près du détecteur et avec un blindage en plomb et en polyéthylène pour protéger le cristal de germanium et limiter le bruit de fond actif. Cependant, le temps mort initial de cette mesure juste après l'irradiation avoisinait les 95 % (voir Tableau 3.4). Une autre mesure « Pu 2 » a donc été effectuée en plaçant l'échantillon de plutonium plus loin du détecteur et en supprimant le blindage neutronique compte tenu de la faible masse de l'échantillon.

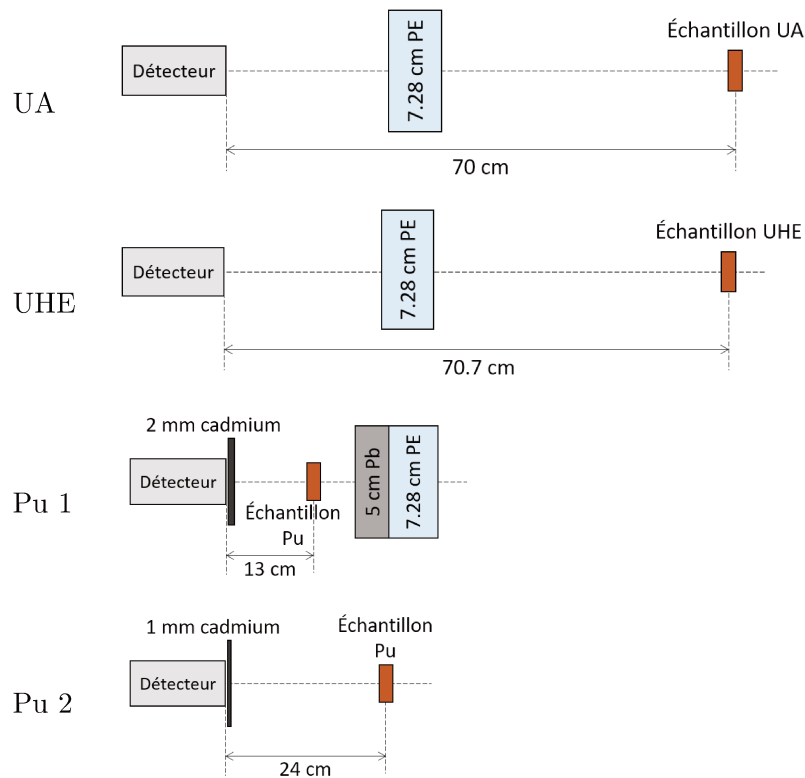


FIGURE 3.11 – Configurations de détection PE pour les différents échantillons irradiés en 2021.

De la même façon que pour la campagne expérimentale de 2019, les efficacités absolues de détection dans les différentes configurations présentées sur la Figure 3.11 ont été simulées avec MCNP sur une large plage en énergie. Ces courbes sont données sur la Figure 3.12 pour les différents échantillons étudiés. Les échantillons d'uranium étant situés plus loin du détecteur que l'échantillon de plutonium, l'efficacité de détection est moindre. De même, on observe une seconde fois que l'auto-atténuation dans l'échantillon d'UA implique une courbe d'efficacité de détection située en dessous de celle de l'UHE.

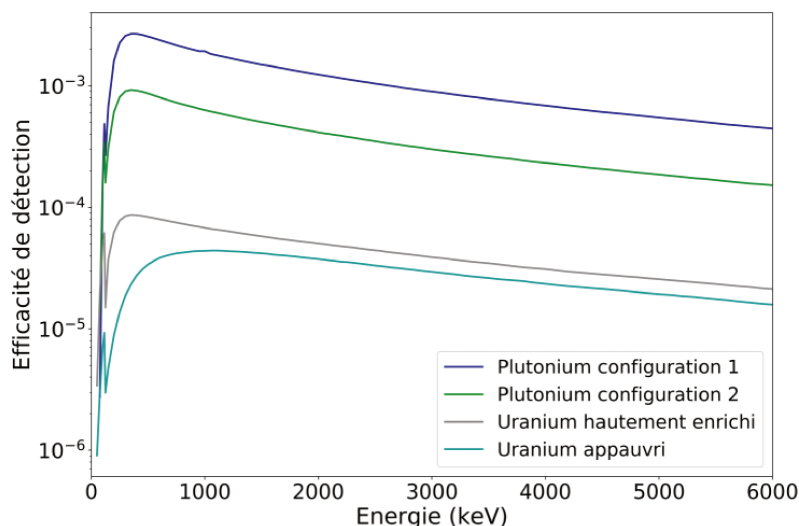


FIGURE 3.12 – Courbes d'efficacité de détection pour les échantillons d'actinides irradiés en 2021.

Comme pour les expériences de 2019, le détecteur Ge HP possède un préamplificateur à remise à zéro par transistor et est couplé à un analyseur de signal numérique LYNX (MIRION/CANBERRA). L'enregistrement des spectres est effectué avec le logiciel Genie2000 (MIRION/CANBERRA). Les paramètres de mise en forme trapézoïdale du signal ont été optimisés et sont réglés ici à $2 \mu\text{s}$ pour le *rise time* et à $0,5 \mu\text{s}$ pour le *flat top*. Le LINAC ayant subi une augmentation de son intensité et de

son énergie en 2021, les produits de photofission et d'activation ont été produits en plus grand nombre qu'en 2019. Des acquisitions séquentielles avec une réinitialisation du spectre toutes les 60 s ont donc été effectuées pour toutes les mesures de la campagne de 2021, afin de suivre au mieux l'évolution du temps mort. Ces spectres bruts ont ensuite été corrigés du temps mort en post-traitement puis sommés pour créer des spectres avec des temps de refroidissement et de comptage adaptés à l'observation des différents produits de photofission. Le temps mort étant très élevé pour les échantillons d'UA et de plutonium à l'issue du temps de transfert de quelques dizaines de secondes, l'analyse de ces spectres de rayonnements gamma retardés n'a eu lieu qu'à l'issue d'un temps de refroidissement au bout duquel le temps mort passait en dessous de 50 %. Cette valeur a été déterminée suite à une optimisation de la chaîne de spectrométrie gamma avec la méthode des deux sources, en utilisant une source de référence de faible activité ($^{88}\text{Y} + ^{137}\text{Cs}$) et une source perturbatrice de forte activité (^{152}Eu). Les caractéristiques de la phase de détection sont résumées dans le Tableau 3.4.

TABLEAU 3.4 – Caractéristiques de la phase de détection pour les expériences de 2021.

Mesure	UA	UHE	Pu 1	Pu 2
Temps de transfert	45 s	42 s	35 s	22 s
Temps mort initial	80 %	39,3 %	94,6 %	61,3 %
Temps de refroidissement (DT < 50 %)	19 min	42 s	50 min	10 min
Durée d'une acquisition	60 s			
Temps de comptage total	41,6 h	24,0 h	23,9 h	20,4 h

3.3 Méthode de mesure des rendements de photofission cumulatifs

3.3.1 Contributions photoniques et neutroniques aux fissions

Nous avons vu dans le Chapitre 2 que la production de photoneutrons via l'interaction des photons de haute énergie du LINAC avec les matériaux du dispositif (cible, collimateur, cadmium du blindage) n'était pas négligeable. De même, des photoneutrons peuvent être produits directement dans les échantillons d'actinides, composés notamment d'uranium métallique ou de zirconium. Le but de ce chapitre étant de mesurer les rendements de photofission, il est important d'estimer les différentes contributions aux fissions. Il est notamment intéressant d'évaluer la part des fissions neutroniques afin de les retrancher du signal total que l'on obtient, et ce dans le but de fournir des rendements de photofission les plus réalistes possibles pour les actinides étudiés.

3.3.1.1 Campagne expérimentale de 2019

Lors de la campagne expérimentale de 2019, les deux échantillons d'uranium dont nous disposions étaient composés d'uranium métallique ainsi que de zirconium pour l'échantillon d'UHE. Ces deux matériaux sont enclins à la production de photoneutrons via l'interaction de photons de haute énergie. Pour rappel, nous avons utilisé la réaction $^{238}\text{U}(\gamma, n)^{237}\text{U}$ pour la caractérisation du faisceau de photons du LINAC qui fait appel à la production d'un photoneutron. Des simulations MCNP ont été effectuées pour évaluer la production de neutrons à l'intérieur des échantillons d'uranium via les réactions (γ, n) , (n, f) et (γ, f) . Comme montré dans le Tableau 3.5, elle est largement dépendante de la géométrie et de la composition des échantillons. Pour l'échantillon d'UA, les simulations montrent que les neutrons produits au sein même de l'échantillon représentent 99 % du flux total de neutrons dans l'échantillon. Ils sont principalement produits par des réactions (γ, n) , $(\gamma, 2n)$ ou lors des photofissions et induisent des fissions neutroniques rapides représentant 5,5 % des fissions totales. En ce qui concerne l'échantillon d'UHE, 66 % des neutrons sont créés dans l'échantillon. Parmi eux, 30 % sont produits par des réactions (γ, xn) sur les isotopes du zirconium présents dans le cœur fissile en UZr et dans le cadre en Zircaloy. Le reste des neutrons atteignant l'échantillon d'UHE est issu de réactions de photons de haute énergie avec le cadmium du blindage (voir la Section 2.2.2.2 du Chapitre 2). Pour ce même échantillon, les fissions neutroniques ne représentent que 0,5 % des fissions totales et elles sont induites par des

neutrons rapides sur ^{235}U . Ceci est lié à la faible épaisseur de l'échantillon (inférieure à 1 mm). Les neutrons sont donc enclins à s'échapper sans interagir, contrairement à l'échantillon d'UA ayant une épaisseur de 1 cm et une masse volumique d'environ $19\text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$. Cette maigre contribution des fissions neutroniques sera négligée pour les calculs des rendements de photofission avec l'échantillon d'UHE et on considèrera que 3,7 % des photofissions ont lieu sur ^{238}U tandis que le reste des fissions sera attribué à la photofission de ^{235}U .

Il est important de noter que la production de photoneutrons en dehors des échantillons d'uranium n'a pas d'impact significatif sur le taux de fission neutronique parasite dans cette configuration expérimentale. En effet, il s'agit de photoneutrons rapides (les photoneutrons thermiques sont absorbés dans le cadmium du blindage du LINAC), minoritaires en nombre, pour lesquels la section efficace de fission est faible (tout au plus de l'ordre du barn).

TABLEAU 3.5 – Origine des neutrons et différentes contributions aux fissions lors des expériences de 2019.

	UA	UHE
Part des neutrons produits à l'intérieur de l'échantillon	99 %	66 %
Part des fissions neutroniques par rapport aux fissions totales	5,5 %	0,5 %
• Fissions neutroniques sur ^{238}U	5,5 %	-
• Fissions neutroniques sur ^{235}U	-	0,5 %
Part des photofissions par rapport aux fissions totales	94,5 %	99,5 %
• Photofissions sur ^{238}U	94,5 %	3,7 %
• Photofissions sur ^{235}U	-	95,8 %

Les taux de photofission dans les échantillons d'UA et d'UHE sont calculés par simulation MCNP à l'aide des caractéristiques du faisceau de photons de Bremsstrahlung évaluées dans le Chapitre 2 :

$$\tau_{p,UA} = (2,80 \pm 0,39) \times 10^6 \text{ s}^{-1} \text{ et } \tau_{p,UHE} = (1,04 \pm 0,14) \times 10^5 \text{ s}^{-1}$$

L'incertitude sur le taux de photofission est calculée comme la combinaison quadratique des incertitudes suivantes :

- 13,9 % d'incertitude relative sur le flux de photons de *Bremsstrahlung*, déterminé dans le Chapitre 2, Section 2.2.1.2,
- 0,4 % et 0,8 % d'incertitude statistique relative de calcul sur les simulations MCNP du taux de photofission dans les échantillons d'UA et d'UHE, respectivement,
- 2 % d'incertitude relative sur la section efficace de photofission, conformément aux jeux de données disponibles dans la librairie EXFOR [108],
- 2 % d'incertitude relative sur la masse d'uranium dans l'échantillon d'UHE et une incertitude négligeable (inférieure à 1 %) sur la masse de l'échantillon d'UA.

3.3.1.2 Campagne expérimentale de 2021

De la même façon que pour la campagne expérimentale de 2019, des simulations MCNP ont été effectuées pour évaluer les différentes contributions aux fissions dans les échantillons utilisés en 2021. Les résultats sont reportés dans le Tableau 3.6.

TABLEAU 3.6 – Différentes contributions aux fissions dans les échantillons de la campagne expérimentale de 2021.

Plutonium		Uranium		
Part de photofissions	98,3 %	Échantillon	UA	UHE
Part de fissions neutroniques	1,7 %	Photofissions sur ^{238}U	94,2 %	3,6 %
		Photofissions sur ^{235}U	-	93,1 %
		Fissions neutroniques sur ^{238}U	5,8 %	-
		Fissions neutroniques sur ^{235}U	-	3,3 %

Dans l'échantillon de plutonium, on observe 1,7% de fissions neutroniques qui seront soustraits pour obtenir les rendements de photofission du ^{239}Pu . De plus, étant donné la similarité des sections efficaces de photofission pour le ^{239}Pu et le ^{240}Pu (voir Figure 3.13 ci-contre), on fera l'hypothèse que toutes les photofissions ont lieu sur le ^{239}Pu (on rappelle que ces deux isotopes représentent environ 95% massiques de la quantité de plutonium, voir Tableau 3.2). Concernant l'échantillon d'UA contenant seulement 0,3% d' ^{235}U , toutes les fissions sont attribuées à l' ^{238}U . Parmi elles, 5,8% sont causées par des neutrons rapides et seront soustraites pour accéder aux rendements de photofission cumulatifs. Enfin, dans l'échantillon d'UHE, 3,6% des fissions sont des photofissions sur l' ^{238}U . Le reste se partage entre 93,1% de photofissions sur l' ^{235}U et 3,3% de fissions neutroniques rapides sur l' ^{235}U . Les contributions autres que la photofission sur l' ^{235}U seront soustraites pour obtenir les taux de production des produits de photofission de l' ^{235}U .

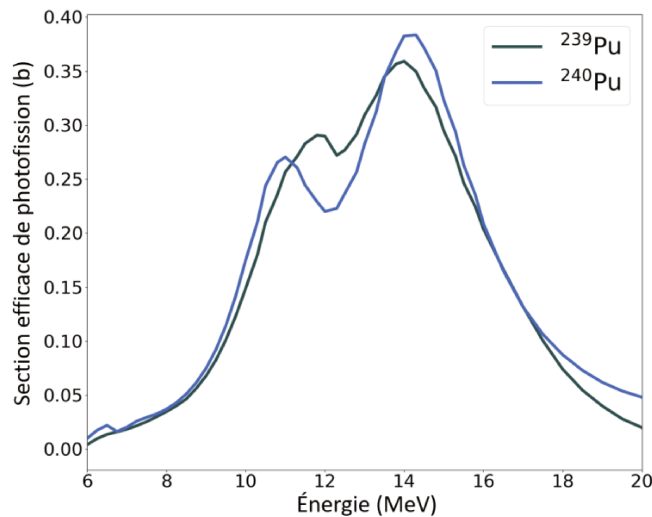


FIGURE 3.13 – Sections efficaces de photofission de ^{239}Pu et ^{240}Pu [40].

Les taux de photofission dans les échantillons d'actinides sont calculés par simulation MCNP à l'aide des caractéristiques du faisceau de photons de *Bremsstrahlung* évaluées dans le Chapitre 2 :

$$\tau_{p,UA} = (2,66 \pm 0,38) \times 10^8 \text{ s}^{-1}$$

$$\tau_{p,UHE} = (3,38 \pm 0,48) \times 10^7 \text{ s}^{-1}$$

$$\tau_{p,Pu1} = (1,32 \pm 0,19) \times 10^7 \text{ s}^{-1}$$

$$\tau_{p,Pu2} = (2,33 \pm 0,34) \times 10^6 \text{ s}^{-1}$$

L'incertitude sur le taux de photofission est calculée de la même manière que pour la campagne expérimentale de 2019 (voir Section 3.3.1.1).

3.3.2 Résolution des équations de Bateman

Les produits de fission créés pendant l'irradiation font partie de chaînes de désintégration et leurs activités peuvent être calculées en résolvant les équations de Bateman [113]. En général, ces équations peuvent être simplifiées en considérant seulement la désintégration du produit de fission émettant la raie gamma d'intérêt, comme reporté dans l'équation (3.1). Cependant, comme expliqué ci-après pour introduire l'équation (3.2), il est parfois nécessaire de considérer le précurseur direct du produit de fission d'intérêt, ces deux noyaux étant nommés respectivement le père et le fils, comme dans les travaux de Kahane *et al.* [92] et Carrel *et al.* [90].

$$N(E_i) = \frac{I(E_i)\varepsilon(E_i)}{\lambda_j} (1 - e^{-\lambda_j t_{irr}}) e^{-\lambda_j t_{refr}} (1 - e^{-\lambda_j t_{mes}}) [\tau_p(\eta_{k,p} Y_{ck,p} + \eta_{l,p} Y_{cl,p}) + \tau_n(\eta_{k,n} Y_{ck,n} + \eta_{l,n} Y_{cl,n})] \quad (3.1)$$

Avec :

- $I(E_i)$ l'intensité d'émission du rayonnement gamma retardé, issue de la base de données JEFF-3.3 [106],
- $\varepsilon(E_i)$ l'efficacité de détection totale prenant en compte l'efficacité intrinsèque du détecteur et l'efficacité géométrique (distance échantillon-détecteur, écrans éventuels) ainsi que l'auto-protection du flux interrogateur et l'auto-absorption des rayonnements gamma retardés dans l'échantillon. Cette efficacité est déterminée par simulation MCNP.
- λ_j la constante radioactive du produit de fission j en s^{-1} ,
- t_{irr} , t_{refr} et t_{mes} les durées d'irradiation, de refroidissement et de comptage exprimées en s,
- τ_p et τ_n les taux de photofission et de fission neutroniques dans l'échantillon en s^{-1} , évalués par simulation MCNP,
- $Y_{ck,p}$ et $Y_{cl,p}$ les taux de production cumulatifs du produit de photofission j , respectivement pour les actinides k et l (par exemple ^{235}U et ^{238}U),
- $Y_{ck,n}$ et $Y_{cl,n}$ les taux de production cumulatifs du produit de fission j créé par fission neutronique rapide des actinides k et l , issus de la base de données ENDF/B-VIII.0 [40],
- $\eta_{k,p}$ et $\eta_{l,p}$ les parts de photofissions sur les actinides k et l , déterminées par simulation MCNP,
- $\eta_{k,n}$ et $\eta_{l,n}$ les parts de fissions neutroniques sur les actinides k et l , déterminées par simulation MCNP.

Cependant, lorsque le produit de fission d'intérêt est le noyau fils d'un précurseur ayant une demi-vie similaire (on peut citer par exemple les cas de ^{134}I et ^{138}Cs , de périodes respectives 52,5 et 33,4 min, qui sont les descendants de ^{134}Te et ^{138}Xe de périodes respectives 41,8 et 33,4 min) et le temps de refroidissement est court par rapport à ces périodes radioactives (*i.e.* ne permettant pas la décroissance de l'ensemble des noyaux pères précurseurs en noyaux fils d'intérêt), l'aire nette du pic d'absorption totale du rayonnement gamma retardé d'énergie E_i est donnée par (3.2).

$$N(E_i) = I(E_i)\varepsilon(E_i) (\tau_p [\eta_{k,p} (Y_{ik,p}^d f_d + Y_{ck,p}^f f_f) + \eta_{l,p} (Y_{il,p}^d f_d + Y_{cl,p}^f f_f)] \dots \dots + \tau_n [\eta_{k,n} (Y_{ik,n}^d f_d + Y_{ck,n}^f f_f) + \eta_{l,n} (Y_{il,n}^d f_d + Y_{cl,n}^f f_f)]) \quad (3.2)$$

Avec :

- $I(E_i)$, $\varepsilon(E_i)$, τ_p , τ_n , $\eta_{k,p}$, $\eta_{l,p}$, $\eta_{k,n}$ et $\eta_{l,n}$ gardant la même signification que dans (3.1),
- $Y_{ck,p}^f$ et $Y_{cl,p}^f$ les taux de production cumulatifs du noyau père (exposant f pour father et indice p pour photofission) pour la photofission des actinides k et l ,
- $Y_{ik,p}^d$ et $Y_{il,p}^d$ les taux de production indépendants du noyau fils (exposant d pour daughter) pour la photofission des actinides k et l . Le taux de production indépendant (en %) d'un produit de photofission correspond au nombre de noyaux créés pour 100 photofissions de l'actinide considéré, juste après l'émission de neutrons prompts et avant l'émission de neutrons retardés. Ces valeurs

seront calculées pour certains produits de photofission pour déterminer le taux de production cumulatif du noyau fils, qui est la somme de son taux de production indépendant et du taux de production cumulatif de son noyau précurseur. Notons que, comme dans les références de Kahane *et al.* [92] et Carrel *et al.* [90], nous ne considérons que le précurseur direct, puisque les précurseurs du noyau père ont eux-mêmes une demi-vie relativement courte par rapport à la durée de refroidissement imposée par les conditions expérimentales, ce qui conduit à la décroissance de l'ensemble de ces précurseurs du père pendant le refroidissement. Dans ce cas, on peut écrire $Y_{c,p}^d = Y_{i,p}^d + Y_{c,p}^f$.

- $Y_{ck,n}^f$ et $Y_{cl,n}^f$ les taux de production cumulatifs du noyau père pour la fission neutronique des actinides k et l . Ces valeurs sont issues de la base de données ENDF/B-VIII.0 [40],
- $Y_{ik,n}^d$ et $Y_{il,n}^d$ sont les taux de production indépendants du noyau fils pour la fission neutronique des actinides k et l . Ces valeurs sont issues de la base de données ENDF/B-VIII.0 [40],
- Les termes f_d et f_f décrivent l'évolution temporelle des quantités respectives de noyaux fils et de noyaux pères et sont donnés par les expressions suivantes :

$$f_d = \frac{1}{\lambda_d}(1 - e^{-\lambda_d t_{irr}})e^{-\lambda_d t_{refr}}(1 - e^{-\lambda_d t_{mes}})$$

$$f_f = \frac{1}{\lambda_d - \lambda_f} \left[\frac{\lambda_d}{\lambda_f}(1 - e^{-\lambda_f t_{irr}})e^{-\lambda_f t_{refr}}(1 - e^{-\lambda_f t_{mes}}) - \frac{\lambda_f}{\lambda_d}(1 - e^{-\lambda_d t_{irr}})e^{-\lambda_d t_{refr}}(1 - e^{-\lambda_d t_{mes}}) \right]$$

Où λ_d et λ_f sont les constantes radioactives du noyau fils et du noyau père (en s^{-1}) et t_{irr} , t_{refr} et t_{mes} sont les durées d'irradiation, de refroidissement et de comptage (en s).

Mais on peut signaler que pour la majorité des produits de photofission observés, la demi-vie du noyau père est très courte devant celle du noyau fils et le temps de refroidissement est au moins 6 fois plus grand que le demi-vie du noyau père (correspondant à la désintégration de 98,5 % des noyaux pères), donc le rendement de photofission cumulatif du noyau fils peut être estimé directement via (3.1).

3.3.3 Extraction des aires nettes des raies des rayonnements gamma retardés

Les taux de production cumulatifs des produits de photofission sont calculés à partir de l'aire nette des pics de gamma retardés, comme indiqué dans les équations (3.1) et (3.2). Les spectres de rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission sont très riches, comme le montrent les exemples de la Figure 3.14 et la Figure 3.15 pour les échantillons d'uranium en 2019, respectivement pour l'UA et l'UHE, ainsi que la Figure 3.16 pour le plutonium en 2021. Sont indiquées sur ces spectres les raies issues de produits de fission (PF), de produits d'activation (PA) et d'émissions passives (EP).

Comme mentionné précédemment, les rayonnements gamma retardés ont été enregistrés de façon séquentielle avec une réinitialisation automatique du spectre toutes les 60 s ou 180 s. Cela nous a permis d'ajuster les périodes de refroidissement et de comptage pour s'adapter au mieux aux périodes des produits de photofission à observer. Les spectres de rayonnements gamma retardés ont été analysés avec le logiciel MAGIX [114] développé par le CEA LIST, en collaboration avec le CEA IRESNE pour la qualification. Ce logiciel automatique est conçu pour l'analyse de spectres complexes de rayonnements gamma et X mesurés notamment avec des détecteurs Ge HP. Basé sur l'expertise du CEA LIST en matière de traitement de spectres complexes [115, 116], ce logiciel peut effectuer une analyse complète du spectre : étalonnage en énergie, identification des radionucléides, déconvolution de pics, détermination de l'efficacité de détection relative (*i.e.* basée sur les intensités relatives des pics à différentes énergies, indépendamment de l'efficacité géométrique) et calcul de l'activité pour chaque radionucléide si l'efficacité de détection absolue (tenant compte de l'efficacité géométrique) est fournie par l'utilisateur ou activités relatives dans le cas contraire. Une de ses particularités est d'inclure des étapes itératives avec la recherche automatique de raies gamma et X dans la base de données JEFF-3.3 [106] dans le but d'identifier tous les pics associés aux radionucléides potentiellement présents dans une liste fournie par l'utilisateur.

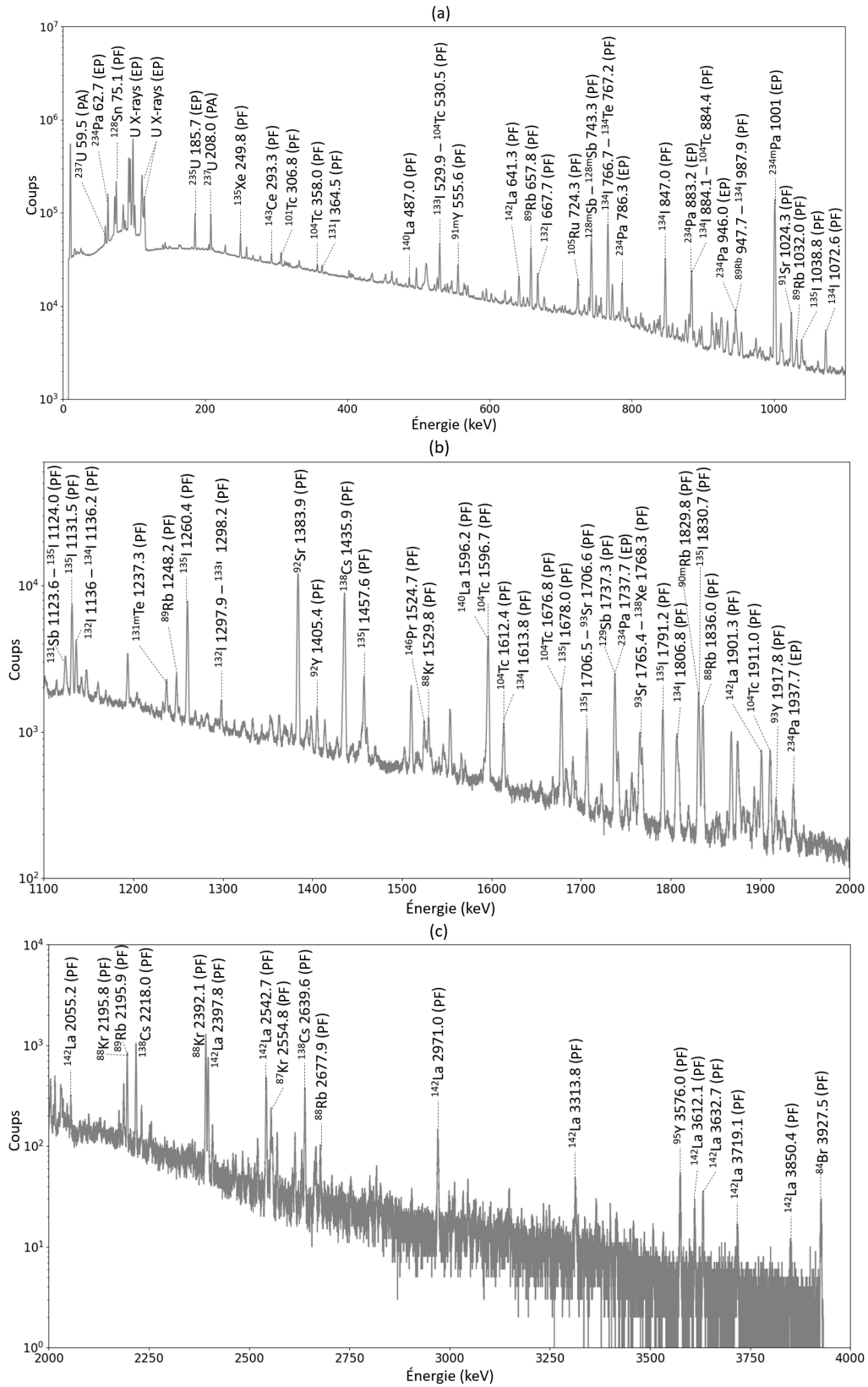


FIGURE 3.14 – Spectre gamma retardé de l'échantillon d'uranium appauvri (UA) enregistré pendant 67 h, après 2 h d'irradiation et 30 s de refroidissement, (a) entre 0 et 1100 keV, (b) entre 1100 et 2000 keV et (c) entre 2000 et 4000 keV.

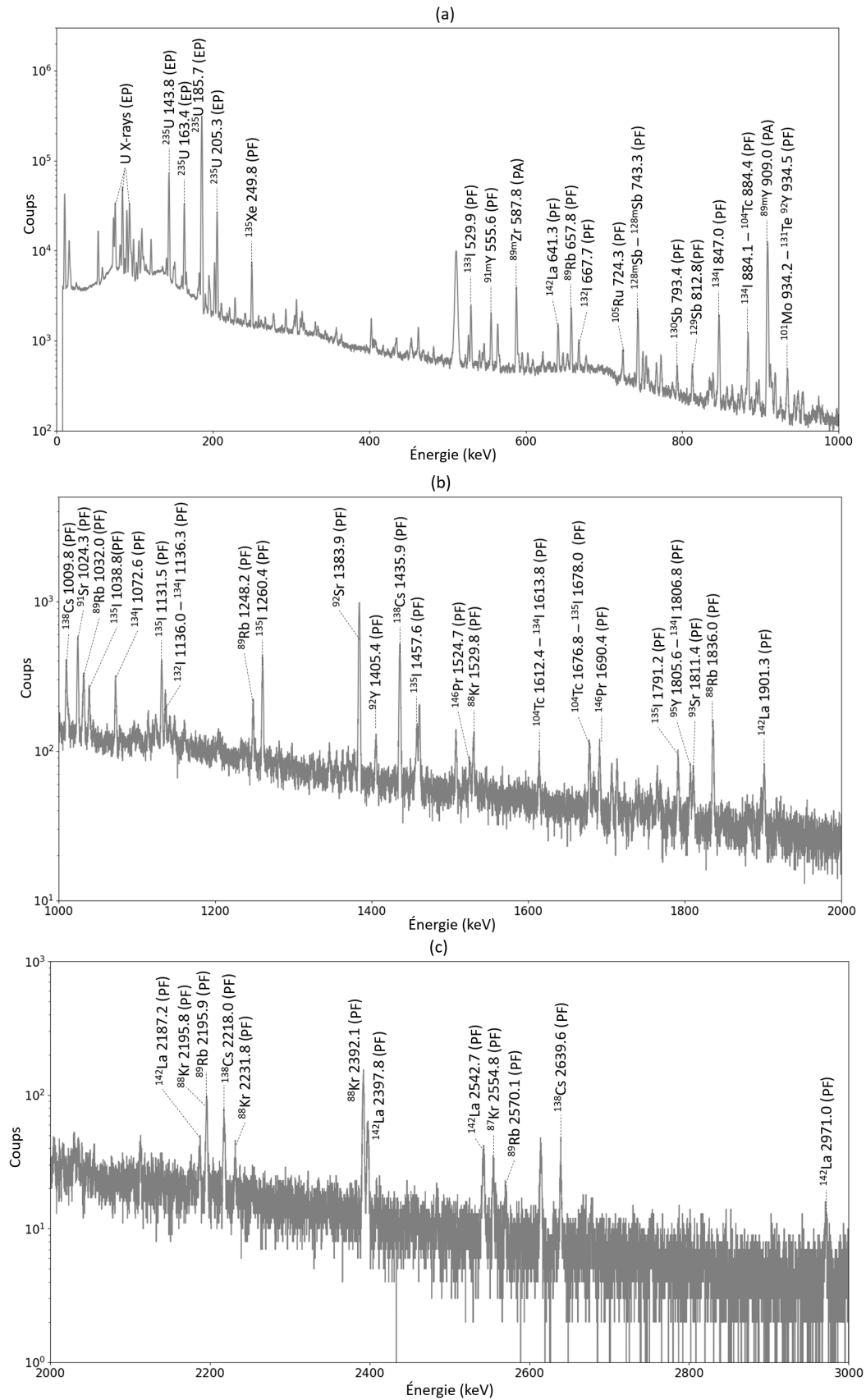


FIGURE 3.15 – Spectre gamma retardé de l'échantillon d'uranium hautement enrichi (UHE) enregistré pendant 22 h, après 2 h d'irradiation et 30 s de refroidissement, (a) entre 0 et 1000 keV, (b) entre 1000 et 2000 keV et (c) entre 2000 et 3000 keV .

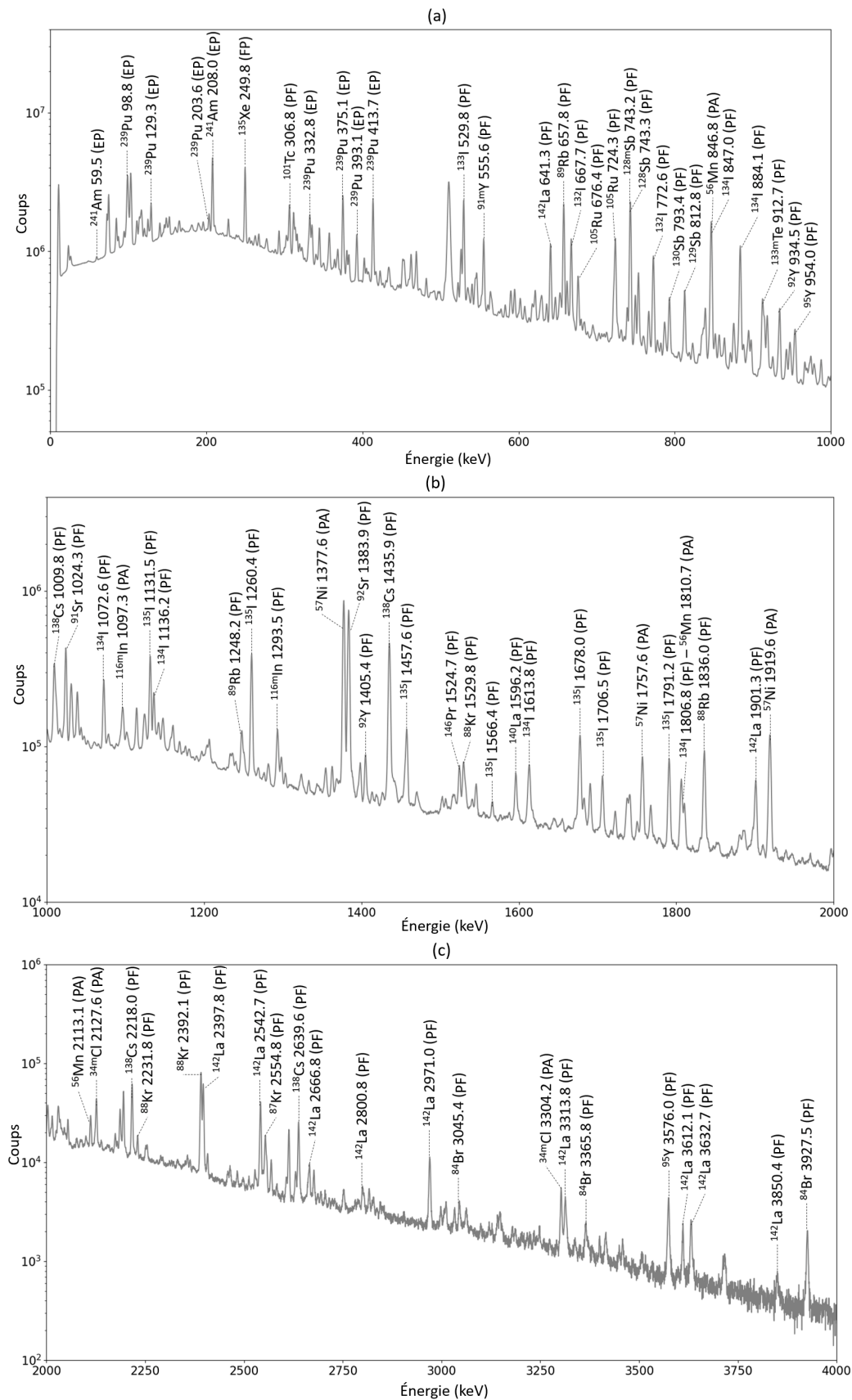


FIGURE 3.16 – Spectre gamma retardé de l'échantillon de plutonium enregistré pendant 24 h, après 2 h d'irradiation et 35 s de refroidissement, (a) entre 0 et 1000 keV, (b) entre 1000 et 2000 keV et (c) entre 2000 et 4000 keV.

3.3.4 Calcul des rendements de photofission cumulatifs et de l'incertitude associée

Les taux de production des produits de photofission sont calculés à partir des aires nettes de leurs pics gamma et des équations (3.1) et (3.2). L'incertitude associée au rendement de photofission cumulatif est calculée comme la combinaison quadratique des incertitudes suivantes :

- L'incertitude relative de 13,9 % ou 14,3 % sur les taux de photofission, respectivement en 2019 et 2021, principalement due à l'incertitude sur le flux de photons de *Bremsstrahlung* interrogateur. Cette dernière représente la plus grande partie de l'incertitude globale dans nos mesures et pourrait être réduite en mesurant précisément les sections efficaces de réaction (γ, n) des matériaux utilisés pour caractériser le faisceau de photons, leurs incertitudes actuelles étant autour de 10 % dans la librairie EXFOR [108],
- L'incertitude relative sur l'efficacité de détection du rayonnement gamma d'énergie E_i , estimée à 7 % (combinaison quadratique des incertitudes relatives de 5 % sur l'efficacité géométrique et de 5 % sur l'efficacité intrinsèque du détecteur),
- L'incertitude statistique sur la surface nette du pic $N(E_i)$, calculée par la formule $\sigma(N(E_i)) = \sqrt{N(E_i) + 2B}$, où B est le fond Compton sous ce pic.

Lorsque plusieurs raies gamma sont mesurées pour un même produit de photofission et que leurs pics sont correctement traités par le logiciel MAGIX, une moyenne pondérée des rendements cumulatifs est effectuée. Le coefficient de pondération est défini comme l'inverse de l'incertitude statistique relative quadratique sur l'aire nette du pic d'absorption totale, comme décrit dans (3.3). À noter que l'incertitude sur cette moyenne pondérée ne prend pas en compte les incertitudes sur les intensités d'émission des différents rayonnements gamma considérés (négligeables par rapport à l'incertitude sur le taux de photofission, commune à tous les résultats).

$$\bar{y}_c = \frac{\sum_{i=1}^N \frac{y_{c,i}(E)}{\left(\frac{\sigma(N(E_i))}{N(E_i)}\right)^2}}{\sum_{i=1}^N \frac{1}{\left(\frac{\sigma(N(E_i))}{N(E_i)}\right)^2}} \quad (3.3)$$

Où $y_{c,i}(E_i)$ est le rendement de photofission cumulatif calculé avec l'aire nette du pic d'absorption totale $N(E_i)$ du rayonnement gamma d'énergie E_i , et $\sigma(N(E_i))$ est l'incertitude statistique calculée par la formule $\sigma(N(E_i)) = \sqrt{N(E_i) + 2B}$. L'incertitude statistique présente dans la somme quadratique décrite précédemment est alors remplacée par l'incertitude statistique relative sur la moyenne pondérée donnée par la formule (3.3), $\frac{\sigma_{stat}(\bar{y}_c)}{\bar{y}_c}$, avec $\sigma_{stat}(\bar{y}_c) = \sqrt{\frac{1}{\sum_{i=1}^N \frac{1}{\left(\frac{\sigma(N(E_i))}{N(E_i)}\right)^2}}}$.

3.4 Rendements de photofission cumulatifs pour différents actinides

3.4.1 Introduction

Cette section est consacrée aux résultats de mesure des taux de production cumulatifs des produits de photofission des différents actinides étudiés. Dans un premier temps, nous passons en revue les mesures effectuées en 2019 sur ^{238}U et ^{235}U avec un faisceau de *Bremsstrahlung* de 15,8 MeV. La seconde sous-section est consacrée aux mesures de 2021 sur ^{238}U , ^{235}U et le ^{239}Pu avec un faisceau de *Bremsstrahlung* plus énergétique et intense, d'énergie de fin de faisceau à 17,5 MeV. Enfin, la dernière sous-section s'attache à comparer les résultats obtenus avec ceux publiés par d'autres équipes de recherche.

3.4.2 Résultats avec un faisceau de *Bremsstrahlung* jusqu'à 15,8 MeV (2019)3.4.2.1 ^{238}U

La liste des taux de production cumulatifs des produits de photofission de ^{238}U mesurés en 2019 est donnée dans le Tableau 3.7. Les périodes radioactives des différents isotopes sont issues de la base de données JEFF-3.3 [106], hormis celle du ^{92}Sr montrant une incohérence entre les bases de données et par conséquent issue du travail de Leconte *et al.* [117]. Au total, 49 taux de production ont été mesurés. Certains produits de photofission émettant de multiples rayonnements gamma retardés, les valeurs répertoriées dans ce tableau sont issues d'une moyenne pondérée, comme décrit dans la Section 3.3.3. Le détail des taux de production calculés pour chaque rayonnement gamma retardé ainsi que les temps de refroidissement et de mesure pour chaque produit de photofission sont donnés dans l'Annexe A.

TABLEAU 3.7 – Taux de production cumulatifs (nombre de produits de photofission pour 100 fissions) pour la photofission de ^{238}U mesurés lors de la campagne de 2019.

Produit de photofission	$T_{1/2}$	Y_c (%)		Produit de photofission	$T_{1/2}$	Y_c (%)
^{84}Br	31,8 min	$1,37 \pm 0,22$		^{128}Sb	9,0 h	$0,21 \pm 0,03$
^{87}Kr	1,3 h	$1,96 \pm 0,31$		^{128m}Sb	10,4 min	$1,73 \pm 0,25$
^{88}Kr	2,8 h	$2,24 \pm 0,35$		^{129}Sb	4,4 h	$1,09 \pm 0,17$
^{88}Rb	17,8 min	$2,68 \pm 0,79$		^{130}Sn	3,7 min	$0,45 \pm 0,10$
^{89}Rb	15,4 min	$3,50 \pm 0,56$		^{130}Sb	39,5 min	$0,80 \pm 0,12$
^{90}Rb	2,6 min	$1,67 \pm 0,28$		^{131}Sb	23,0 min	$2,51 \pm 0,38$
^{90m}Rb	4,3 min	$1,06 \pm 0,18$		^{131m}Te	1,3 jours	$0,70 \pm 0,10$
^{91}Sr	9,7 h	$3,86 \pm 0,62$		^{132}Te	3,2 jours	$4,71 \pm 0,75$
^{91m}Y	49,7 min	$2,34 \pm 0,49$		^{132}I	2,3 h	$4,87 \pm 0,76$
^{92}Sr	2,6 h	$4,05 \pm 0,64$		^{133}Sb	2,5 min	$2,59 \pm 0,43$
^{92}Y	3,5 h	$4,80 \pm 0,81$		^{133m}Te	55,4 min	$3,23 \pm 0,45$
^{93}Sr	7,4 min	$4,44 \pm 0,86$		^{134}Te	41,8 min	$5,30 \pm 0,86$
^{93}Y	10,2 h	$4,70 \pm 0,94$		^{134}I	52,5 min	$7,30 \pm 1,16$
^{94}Sr	1,3 min	$4,35 \pm 0,70$		^{135}I	6,6 h	$5,85 \pm 0,94$
^{94}Y	18,7 min	$4,48 \pm 0,77$		^{135m}Xe	15,3 min	$1,32 \pm 0,43$
^{95}Y	10,3 min	$4,85 \pm 0,74$		^{138}Xe	14,1 min	$3,75 \pm 0,61$
^{97}Zr	16,7 h	$5,95 \pm 0,95$		^{138}Cs	33,4 min	$5,91 \pm 0,87$
^{99}Mo	2,7 jours	$4,65 \pm 0,78$		^{140}Cs	64 s	$5,65 \pm 0,94$
^{99m}Tc	6,0 h	$4,36 \pm 0,70$		$^{140}\text{La}^{(a)}$	1,7 jours	$5,72 \pm 0,94$
^{101}Mo	14,6 min	$5,37 \pm 0,88$		^{141}Ba	18,3 min	$4,76 \pm 0,75$
^{101}Tc	14,2 min	$5,61 \pm 1,20$		^{142}Ba	10,6 min	$4,38 \pm 0,79$
^{104}Tc	18,3 min	$3,60 \pm 0,58$		^{142}La	1,5 h	$4,89 \pm 0,88$
^{105}Ru	4,4 h	$2,77 \pm 0,45$		^{143}Ce	1,4 jours	$4,39 \pm 0,70$
^{105}Rh	1,5 jours	$2,78 \pm 0,49$		^{146}Pr	24,2 min	$5,89 \pm 0,93$
^{128}Sn	59,1 min	$0,57 \pm 0,09$				

- (a) Le taux de production cumulatif de ^{140}Ba n'a pas pu être mesuré au vu de sa longue période de presque 13 jours (comparée au temps de mesure inférieur à 3 jours). On suppose que le taux de production indépendant de ^{140}Ba est négligeable, comme c'est le cas pour la fission neutronique de ^{238}U ($Y_{i,8}(^{140}\text{Ba}) = 0,14\%$ selon la base de données ENDF B-VIII.0 [40] qui donne déjà un ordre de grandeur de la valeur attendue). Comme la demi-vie de ^{140}La est beaucoup plus faible que celle de son noyau père ^{140}Ba (1,7 jours contre 13 jours), le taux de production indépendant de ^{140}La peut être calculé en analysant le spectre de gamma retardés. On fait l'hypothèse que la somme du taux de production cumulatif de ^{140}Cs et du taux de production indépendant de ^{140}La donne une estimation pertinente du taux de production cumulatif de ^{140}La .

Les taux de production mesurés pour l' ^{238}U en 2019 sont comparés aux résultats obtenus en 2021 ainsi qu'aux taux de production publiés dans la littérature dans la Section 3.4.4.1. Comme mentionné dans [80], nous avons mesuré lors de la campagne de 2019 les taux de production de 8 produits de photofission qui n'avaient pas été publiés auparavant, à savoir ^{90}Rb , $^{90\text{m}}\text{Rb}$, $^{99\text{m}}\text{Tc}$, $^{128\text{m}}\text{Sb}$, ^{130}Sn , ^{133}Sb , ^{140}Cs et ^{140}La (mis en gras dans le Tableau 3.7).

3.4.2.2 ^{235}U

La liste des 26 taux de production cumulatifs des produits de photofission de l' ^{235}U mesurés en 2019 est donnée dans le Tableau 3.8. Le détail des taux de production calculés pour chaque rayonnement gamma retardé ainsi que les temps de refroidissement et de mesure pour chaque produit de photofission sont donnés dans l'Annexe B.

TABLEAU 3.8 – Taux de production cumulatifs (nombre de produits de photofission pour 100 fissions) pour la photofission de l' ^{235}U mesurés lors de la campagne de 2019.

Produit de photofission	$T_{1/2}$	Y_c (%)		Produit de photofission	$T_{1/2}$	Y_c (%)
^{87}Kr	1,3 h	$4,64 \pm 0,74$		^{129}Sb	4,4 h	$2,46 \pm 0,36$
^{88}Kr	2,8 h	$5,34 \pm 0,84$		^{130}Sb	39,5 min	$1,49 \pm 0,25$
^{89}Rb	15,4 min	$6,89 \pm 1,08$		^{131}Sb	23,0 min	$3,42 \pm 0,53$
^{91}Sr	9,7 h	$7,72 \pm 1,18$		$^{131\text{m}}\text{Te}$	1,3 jours	$1,98 \pm 0,33$
$^{91\text{m}}\text{Y}$	49,7 min	$4,79 \pm 1,72$		^{134}Te	41,8 min	$5,33 \pm 0,84$
^{92}Sr	2,6 h	$7,92 \pm 1,23$		^{134}I	52,5 min	$7,52 \pm 2,22$
^{92}Y	3,5 h	$9,01 \pm 2,44$		^{135}I	6,6 h	$7,34 \pm 1,14$
^{93}Sr	7,4 min	$8,02 \pm 1,53$		^{138}Xe	14,1 min	$7,36 \pm 1,18$
^{93}Y	10,2 h	$8,19 \pm 2,53$		^{138}Cs	33,4 min	$7,79 \pm 2,61$
^{104}Tc	18,3 min	$1,52 \pm 0,24$		^{141}Ba	18,3 min	$6,92 \pm 1,06$
^{105}Ru	4,4 h	$1,86 \pm 0,29$		^{142}Ba	10,6 min	$5,98 \pm 1,06$
^{128}Sn	59,1 min	$1,38 \pm 0,22$		^{142}La	1,5 h	$6,39 \pm 2,18$
^{128}Sb	9,0 h	$0,90 \pm 0,14$		^{143}Ce	1,4 jours	$6,41 \pm 0,99$

Comme mentionné dans [80], les taux de production de ^{92}Y , $^{131\text{m}}\text{Te}$ et ^{134}I pour l' ^{235}U n'étaient pas publiés dans la littérature avant nos mesures. Les taux de production mesurés en 2019 sont comparés aux résultats obtenus en 2021 ainsi qu'aux taux de production publiés dans la littérature dans la Section 3.4.4.2.

3.4.3 Résultats avec un faisceau de *Bremsstrahlung* jusqu'à 17,5 MeV (2021)

3.4.3.1 ^{238}U

La liste des 28 taux de production cumulatifs des produits de photofission de l' ^{238}U mesurés en 2021 est donnée dans le Tableau 3.9. Le détail des taux de production calculés pour chaque rayonnement gamma retardé ainsi que des temps de refroidissement et de mesure pour chaque produit de photofission sont donnés dans l'Annexe C.

TABLEAU 3.9 – Taux de production cumulatifs (nombre de produits de photofission pour 100 fissions) pour la photofission de ^{238}U mesurés lors de la campagne de 2021.

Produit de photofission	$T_{1/2}$	Y_c (%)		Produit de photofission	$T_{1/2}$	Y_c (%)
^{84}Br	31,8 min	$1,01 \pm 0,16$		^{129}Sb	4,4 h	$1,24 \pm 0,20$
^{87}Kr	1,3 h	$1,90 \pm 0,29$		^{130}Sb	39,5 min	$0,89 \pm 0,14$
^{88}Kr	2,8 h	$2,35 \pm 0,38$		^{131}Sb	23,0 min	$2,65 \pm 0,43$
^{89}Rb	15,4 min	$3,44 \pm 0,55$		^{131m}Te	1,3 jours	$0,86 \pm 0,14$
^{91}Sr	9,7 h	$3,93 \pm 0,64$		^{132}Te	3,2 jours	$4,71 \pm 0,77$
^{92}Sr	2,6 h	$4,09 \pm 0,66$		^{132}I	2,3 h	$4,72 \pm 0,79$
^{94}Y	18,7 min	$4,87 \pm 0,79$		^{133m}Te	55,4 min	$3,19 \pm 0,51$
^{97}Zr	16,7 h	$5,82 \pm 0,94$		^{134}Te	41,8 min	$5,58 \pm 0,92$
^{99}Mo	2,7 jours	$6,01 \pm 0,97$		^{134}I	52,5 min	$7,00 \pm 1,25$
^{101}Mo	14,6 min	$6,56 \pm 1,09$		^{135}I	6,6 h	$5,75 \pm 0,95$
^{104}Tc	18,3 min	$3,80 \pm 0,63$		^{138}Xe	14,1 min	$5,59 \pm 0,90$
^{105}Ru	4,4 h	$2,78 \pm 0,46$		^{138}Cs	33,4 min	$5,87 \pm 1,11$
^{128}Sn	59,1 min	$0,58 \pm 0,09$		^{141}Ba	18,3 min	$5,48 \pm 0,86$
^{128}Sb	9,0 h	$0,22 \pm 0,04$		^{142}La	1,5 h	$4,74 \pm 0,79$

3.4.3.2 ^{235}U

La liste des 26 taux de production cumulatifs des produits de photofission de ^{235}U mesurés en 2021 est donnée dans le Tableau 3.10. Le détail des taux de production calculés pour chaque rayonnement gamma retardé ainsi que des temps de refroidissement et de mesure pour chaque produit de photofission sont donnés dans l'Annexe D.

TABLEAU 3.10 – Taux de production cumulatifs (nombre de produits de photofission pour 100 fissions) pour la photofission de ^{235}U mesurés lors de la campagne de 2021.

Produit de photofission	$T_{1/2}$	Y_c (%)		Produit de photofission	$T_{1/2}$	Y_c (%)
^{84}Br	31,8 min	$1,71 \pm 0,30$		^{130}Sb	39,5 min	$1,12 \pm 0,19$
^{87}Kr	1,3 h	$3,07 \pm 0,53$		^{131}Sb	23,0 min	$2,03 \pm 0,37$
^{88}Kr	2,8 h	$3,59 \pm 0,59$		^{131m}Te	1,3 jours	$1,15 \pm 0,17$
^{89}Rb	15,4 min	$4,76 \pm 0,82$		^{132}Te	3,2 jours	$4,57 \pm 0,80$
^{91}Sr	9,7 h	$4,62 \pm 0,83$		^{132}I	2,3 h	$4,89 \pm 0,86$
^{92}Sr	2,6 h	$5,17 \pm 0,90$		^{133m}Te	55,4 min	$3,18 \pm 0,55$
^{94}Y	18,7 min	$6,03 \pm 1,04$		^{134}Te	41,8 min	$4,12 \pm 0,74$
^{99}Mo	2,7 jours	$4,28 \pm 0,77$		^{134}I	52,5 min	$5,00 \pm 1,87$
^{101}Mo	14,6 min	$5,43 \pm 0,96$		^{135}I	6,6 h	$4,72 \pm 0,85$
^{104}Tc	18,3 min	$1,99 \pm 0,36$		^{138}Xe	14,1 min	$4,35 \pm 0,78$
^{105}Ru	4,4 h	$1,28 \pm 0,23$		^{138}Cs	33,4 min	$4,99 \pm 1,80$
^{128}Sn	59,1 min	$0,96 \pm 0,16$		^{141}Ba	18,3 min	$5,25 \pm 0,88$
^{129}Sb	4,4 h	$1,67 \pm 0,28$		^{142}La	1,5 h	$5,29 \pm 0,92$

Comme mentionné dans [118], le taux de production de ^{132}I a été mesuré pour la première fois lors de notre campagne expérimentale de 2021.

3.4.3.3 ^{239}Pu

La liste des 26 taux de production cumulatifs des produits de photofission du ^{239}Pu mesurés en 2021 est donnée dans le Tableau 3.11. Le détail des taux de production calculés pour chaque rayonnement gamma retardé ainsi que des temps de refroidissement et de mesure pour chaque produit de photofission sont donnés dans l'Annexe E.

TABLEAU 3.11 – Taux de production cumulatifs (nombre de produits de photofission pour 100 fissions) pour la photofission du ^{239}Pu mesurés lors de la campagne de 2021.

Produit de photofission	$T_{1/2}$	Y_c (%)		Produit de photofission	$T_{1/2}$	Y_c (%)
^{84}Br	31,8 min	$1,19 \pm 0,19$		^{105}Rh	1,5 jours	$7,08 \pm 1,11$
^{87}Kr	1,3 h	$2,03 \pm 0,32$		^{128}Sn	59,1 min	$1,14 \pm 0,18$
^{88}Kr	2,8 h	$2,36 \pm 0,36$		^{128}Sb	9,0 h	$1,14 \pm 0,19$
$^{89}\text{Rb}^{(b)}$	15,4 min	$3,99 \pm 0,61$		^{129}Sb	4,4 h	$2,60 \pm 0,42$
^{91}Sr	9,7 h	$4,63 \pm 0,72$		^{130}Sb	39,5 min	$1,64 \pm 0,26$
$^{91m}\text{Y}^{(b)}$	49,7 min	$3,19 \pm 0,56$		$^{131}\text{Sb}^{(b)}$	23,0 min	$2,84 \pm 0,45$
^{92}Sr	2,6 h	$4,73 \pm 0,76$		^{134}Te	41,8 min	$4,88 \pm 0,78$
^{92}Y	3,5 h	$5,42 \pm 0,93$		^{134}I	52,5 min	$7,02 \pm 1,16$
^{93}Y	10,2 h	$4,45 \pm 0,58$		^{135}I	6,6 h	$5,67 \pm 0,94$
$^{94}\text{Y}^{(b)}$	18,7 min	$7,05 \pm 1,13$		^{138}Cs	33,4 min	$8,24 \pm 1,33$
^{97}Zr	16,7 h	$8,81 \pm 1,41$		$^{141}\text{Ba}^{(b)}$	18,3 min	$7,28 \pm 1,20$
$^{104}\text{Tc}^{(b)}$	18,3 min	$6,91 \pm 1,12$		^{142}La	1,5 h	$6,27 \pm 1,00$
^{105}Ru	4,4 h	$6,29 \pm 1,01$		^{143}Ce	1,4 jours	$4,48 \pm 0,76$

(b) Résultats obtenus dans la configuration de mesure « Pu 2 », voir Figure 3.11.

Comme précisé dans [118], les taux de production de ^{84}Br , ^{91m}Y , ^{128}Sb et ^{135}I ont été mesurés en absolu pour la première fois pour le ^{239}Pu lors de cette campagne expérimentale. Nous verrons par la suite que certains de ces produits de photofission s'avèrent utiles pour la différenciation des actinides. Les taux de production présentés ci-dessus sont comparés aux taux de production publiés dans la littérature dans la Section 3.4.4.3.

3.4.4 Comparaison des résultats avec la littérature existante

Nous proposons une comparaison des résultats obtenus dans le cadre des deux campagnes expérimentales en 2021 et 2019 avec les données existantes dans la littérature concernant les taux de production cumulatifs des produits de photofission des différents actinides étudiés. Pour chaque jeu de données existant, les caractéristiques du faisceau interrogateur sont mentionnées sur la première ligne du tableau. Lorsque des valeurs de taux de production cumulatifs sont obtenues avec plusieurs raies gamma émises par un produit de fission multi-émetteur, une valeur moyenne est donnée suivant l'expression (3.3).

3.4.4.1 ^{238}U

La comparaison de nos résultats de 2021 avec ceux de 2019 et avec les données de la littérature pour les rendements cumulatifs des produits de photofission de ^{238}U sont donnés dans le Tableau 3.12.

TABLEAU 3.12 – Rendements cumulatifs (pour 100 fissions) des produits de photofission de ^{238}U et comparaison avec les données publiées.

Faisceau de photons	<i>Bremsstrahlung</i>	<i>Bremsstrahlung</i>	Gamma (capture neutronique)	<i>Bremsstrahlung</i>	<i>Bremsstrahlung</i>	<i>Bremsstrahlung</i>	<i>Bremsstrahlung</i>	<i>Bremsstrahlung</i>	Monoénergétique
Énergie (MeV)	17,5	15,8	7,8	16,3	10,0	14,987	8,0	22,0	13,0
Produit de fission	Résultats 2021 [118]	Résultats 2019 [80]	Kahane 1985 [92]	Carrel 2011 [90]	Naik 2011 [88]	Naik 2013 [87]	Naik 2014 [89]	Wen 2016 [93]	Krishichayan 2019 [47]
^{84}Br	1,01 ± 0,16	1,37 ± 0,21	-	-	-	0,90 ± 0,06	0,30 ± 0,06	-	2,49 ± 0,19
^{87}Kr	1,90 ± 0,29	1,96 ± 0,31	1,82 ± 0,21	-	1,61 ± 0,20	1,86 ± 0,30	1,11 ± 0,13	1,0 ± 0,06	2,29 ± 0,16
^{88}Kr	2,35 ± 0,38	2,24 ± 0,35	-	2,52 ± 0,23	2,77 ± 0,53	2,58 ± 0,19	2,77 ± 0,38	1,0 ± 0,03	2,92 ± 0,17
^{89}Rb	3,44 ± 0,55	3,50 ± 0,56	2,51 ± 0,40	3,30 ± 0,20	-	3,12 ± 0,16	3,42 ± 0,34	1,4 ± 0,13	-
^{91}Sr	3,93 ± 0,64	3,86 ± 0,62	3,81 ± 0,45	4,53 ± 0,22	3,82 ± 0,17	3,69 ± 0,23	4,75 ± 0,48	-	5,27 ± 0,18
^{92}Sr	4,09 ± 0,66	4,05 ± 0,64	-	4,77 ± 0,22	3,83 ± 0,45	4,26 ± 0,13	4,59 ± 0,47	1,7 ± 0,02	4,82 ± 0,15
^{94}Y	4,87 ± 0,79	4,48 ± 0,77	-	5,06 ± 0,24	-	4,47 ± 0,25	4,25 ± 0,47	-	7,50 ± 0,46
^{97}Zr	5,82 ± 0,94	5,95 ± 0,95	5,89 ± 0,66	-	5,43 ± 0,19	5,78 ± 0,17	6,00 ± 0,64	-	6,20 ± 0,19
^{99}Mo	6,01 ± 0,97	4,65 ± 0,78	-	-	4,84 ± 0,44	5,11 ± 0,15	4,75 ± 0,50	-	6,57 ± 0,22
^{101}Mo	6,56 ± 1,09	5,37 ± 0,88	-	6,78 ± 0,32	-	7,13 ± 0,30	7,56 ± 0,77	-	-
^{104}Tc	3,80 ± 0,63	3,60 ± 0,58	4,13 ± 0,50	-	-	3,65 ± 0,28	4,06 ± 0,42	-	4,44 ± 0,64
^{105}Ru	2,78 ± 0,46	2,77 ± 0,45	2,95 ± 0,45	-	2,57 ± 0,21	2,55 ± 0,06	2,91 ± 0,38	-	4,06 ± 0,20
^{128}Sn	0,58 ± 0,09	0,57 ± 0,09	-	-	-	0,85 ± 0,04	0,21 ± 0,03	-	1,22 ± 0,22
^{128}Sb	0,22 ± 0,04	0,21 ± 0,03	-	0,16 ± 0,01	-	-	-	-	-
^{129}Sb	1,24 ± 0,20	1,09 ± 0,17	0,54 ± 0,10	1,33 ± 0,06	1,48 ± 0,33	1,35 ± 0,16	0,63 ± 0,06	-	2,59 ± 0,09
^{130}Sb	0,89 ± 0,14	0,80 ± 0,12	-	1,08 ± 0,05	-	-	-	-	1,61 ± 0,11
^{131}Sb	2,65 ± 0,43	2,51 ± 0,38	-	3,94 ± 0,19	-	4,18 ± 0,18	2,40 ± 0,27	-	5,01 ± 0,33
^{131m}Te	0,86 ± 0,14	0,70 ± 0,10	3,12 ± 0,40	-	-	-	-	-	-
^{132}Te	4,71 ± 0,77	4,71 ± 0,75	2,43 ± 0,50	-	4,84 ± 0,46	5,48 ± 0,14	6,15 ± 0,65	-	5,44 ± 0,25
^{132}I	4,72 ± 0,79	4,87 ± 0,76	3,74 ± 0,46	-	-	-	-	-	-
^{133m}Te	3,19 ± 0,51	3,23 ± 0,45	2,35 ± 0,39	4,43 ± 0,21	-	-	-	3,8 ± 0,42	-
^{134}Te	5,58 ± 0,92	5,30 ± 0,86	6,25 ± 0,89	6,34 ± 0,30	8,27 ± 0,26	7,23 ± 0,33	7,21 ± 0,74	-	7,43 ± 0,51
^{134}I	7,00 ± 1,25	7,30 ± 1,16	6,29 ± 0,94	-	-	8,06 ± 0,34	8,63 ± 0,87	3,1 ± 0,19	-
^{135}I	5,75 ± 0,95	5,85 ± 0,94	5,91 ± 0,68	6,66 ± 0,42	5,88 ± 0,57	5,57 ± 0,12	6,55 ± 0,67	2,6 ± 0,16	6,13 ± 0,29
^{138}Xe	5,59 ± 0,90	3,75 ± 0,61	5,38 ± 0,90	6,60 ± 0,58	-	-	5,91 ± 0,63	1,8 ± 0,41	-
^{138}Cs	5,87 ± 1,11	5,91 ± 0,87	6,10 ± 0,71	-	8,00 ± 0,48	6,84 ± 0,25	6,44 ± 0,68	2,6 ± 0,10	-
^{141}Ba	5,48 ± 0,86	4,76 ± 0,75	-	-	-	4,51 ± 0,23	5,44 ± 0,56	-	-
^{142}La	4,74 ± 0,79	4,89 ± 0,88	3,69 ± 0,43	5,01 ± 0,24	5,26 ± 0,52	4,69 ± 0,20	4,88 ± 0,52	1,7 ± 0,13	5,58 ± 0,18

Nos résultats obtenus lors des deux campagnes expérimentales ne montrent pas de différence notable qui puisse être directement liée au changement de caractéristiques du faisceau interrogateur (passage de l'énergie maximum de 15,8 MeV à 17,5 MeV entre 2019 et 2021). Une comparaison synthétique de nos résultats obtenus en 2021 et 2019 et avec les valeurs de taux de production publiés précédemment dans la littérature est représentée sur la Figure 3.17. Comme signalé précédemment, les résultats sont globalement cohérents entre nos deux séries de mesure sauf pour le ^{138}Xe , le ^{99}Mo et le ^{101}Mo pour lesquels la statistique de comptage a été largement améliorée dans les mesures de 2021, permettant d'affiner leurs taux de production. Concernant les données de la littérature, nos résultats sont en moyenne 25 % inférieurs à ceux de Carrel *et al.* [90] pour les deux campagnes expérimentales malgré une configuration de LINAC similaire. Les données mesurées par Wen *et al.* [93] semblent montrer un biais systématique et sont pour la plupart inférieures aux valeurs attendues pour les différents nombres de masse des produits de photofission reportés. Le taux de production de ^{94}Y mesuré par Krishichayan *et al.* [47], $7,50 \pm 0,46$ %, semble également être une valeur singulière en comparaison à la valeur de $4,87 \pm 0,79$ % que nous mesurons, qui s'avère cohérente avec les autres jeux de données.

Les différences observées peuvent être expliquées par les différentes configurations expérimentales (géométrie des échantillons, faisceau interrogateur, production de photoneutrons, durées d'irradiation, de refroidissement et de comptage, détecteurs, *etc.*) mais également par la méthode d'analyse des données (soustraction des fissions neutroniques, interférences pour certaines raies gamma, prise en compte des chaînes de désintégration, *etc.*).

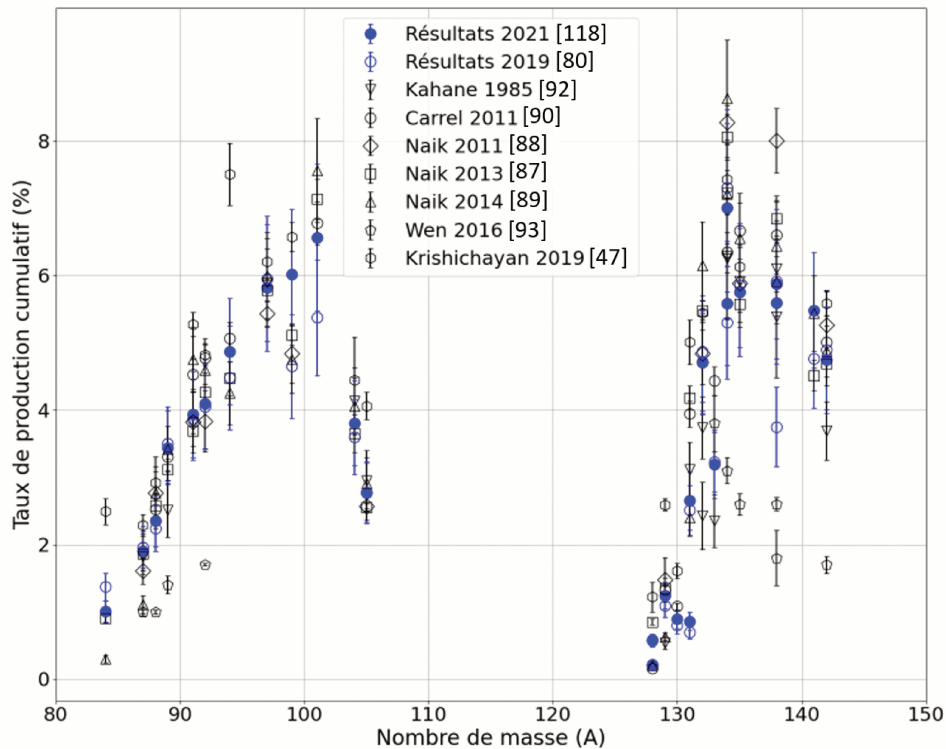


FIGURE 3.17 – Comparaison des taux de productions des produits de photofission de l' ^{238}U mesurés en 2021 avec les résultats de 2019 et les valeurs existantes dans la littérature.

3.4.4.2 ^{235}U

La comparaison de nos résultats de 2021 avec ceux de 2019 et les données de la littérature pour les rendements cumulatifs des produits de photofission de l' ^{235}U sont donnés dans le Tableau 3.13.

TABLEAU 3.13 – Rendements cumulatifs (pour 100 fissions) des produits de photofission de ^{235}U et comparaison avec les données publiées.

Faisceau de photons	<i>Bremsstrahlung</i>	<i>Bremsstrahlung</i>	<i>Bremsstrahlung</i>	Monoénergétique
Énergie (MeV)	17,5	15,8	16,3	13,0
Produit de fission	Résultats 2021 [118]	Résultats 2019 [80]	Carrel 2011 [90]	Krishichayan 2019 [47]
^{84}Br	$1,71 \pm 0,30$	-	-	$1,77 \pm 0,13$
^{87}Kr	$3,07 \pm 0,53$	$4,64 \pm 0,74$	-	$3,45 \pm 0,28$
^{88}Kr	$3,59 \pm 0,59$	$5,34 \pm 0,84$	$3,63 \pm 0,32$	$3,87 \pm 0,22$
^{89}Rb	$4,76 \pm 0,82$	$6,89 \pm 1,08$	$4,69 \pm 0,28$	-
^{91}Sr	$4,62 \pm 0,82$	$7,72 \pm 1,18$	$5,37 \pm 0,26$	$6,08 \pm 0,26$
^{92}Sr	$5,17 \pm 0,90$	$7,92 \pm 1,24$	$5,59 \pm 0,26$	$6,52 \pm 0,21$
^{94}Y	$6,03 \pm 1,04$	-	$5,81 \pm 0,27$	$6,84 \pm 0,37$
^{99}Mo	$4,28 \pm 0,77$	-	-	$5,32 \pm 0,20$
^{101}Mo	$5,43 \pm 0,96$	-	$4,19 \pm 0,20$	-
^{104}Tc	$1,99 \pm 0,36$	$1,52 \pm 0,24$	-	$2,37 \pm 0,14$
^{105}Ru	$1,28 \pm 0,23$	$1,86 \pm 0,29$	-	$1,90 \pm 0,11$
^{128}Sn	$0,96 \pm 0,16$	$1,38 \pm 0,22$	-	$1,22 \pm 0,16$
^{129}Sb	$1,67 \pm 0,28$	$2,46 \pm 0,36$	$1,60 \pm 0,08$	$2,47 \pm 0,12$
^{130}Sb	$1,12 \pm 0,19$	$1,49 \pm 0,25$	$1,12 \pm 0,05$	$0,82 \pm 0,06$
^{131}Sb	$2,03 \pm 0,37$	$3,42 \pm 0,53$	$2,75 \pm 0,13$	$1,59 \pm 0,13$
^{131m}Te	$1,15 \pm 0,17$	$1,98 \pm 0,33$	-	-
^{132}Te	$4,57 \pm 0,80$	-	-	$4,98 \pm 0,26$
^{132}I	$4,89 \pm 0,86$	-	-	-
^{133m}Te	$3,18 \pm 0,55$	-	$4,21 \pm 0,20$	-
^{134}Te	$4,12 \pm 0,74$	$5,33 \pm 0,84$	$3,16 \pm 0,15$	$5,37 \pm 0,39$
^{134}I	$5,00 \pm 1,87$	$7,52 \pm 2,22$	-	-
^{135}I	$4,72 \pm 0,85$	$7,34 \pm 1,14$	$5,06 \pm 0,32$	$4,72 \pm 0,21$
^{138}Xe	$4,35 \pm 0,78$	$7,36 \pm 1,18$	$4,62 \pm 0,41$	-
^{138}Cs	$4,99 \pm 1,80$	$7,79 \pm 2,61$	-	$7,74 \pm 0,33$
^{141}Ba	$5,25 \pm 0,88$	$6,92 \pm 1,06$	-	$4,43 \pm 0,27$
^{142}La	$5,29 \pm 0,92$	$6,39 \pm 2,18$	$5,15 \pm 0,24$	$5,98 \pm 0,19$

L'échantillon d'UHE étant plus massif en 2021 qu'en 2019, la statistique de comptage est améliorée. Cela nous a permis de mesurer les rendements cumulatifs d'autres produits de photofission. Cependant, le temps de refroidissement (19 min) imposé par la limitation du temps mort pour la mesure des taux de production des produits de photofission de ^{238}U en 2021 ne nous a pas permis d'observer des produits de photofission à vie courte. Or, nous utilisons les résultats de taux de production liés à ^{238}U afin de les retrancher au signal brut mesuré pour l'échantillon d'UHE. Une comparaison de nos résultats obtenus en 2021 et 2019 et avec les deux autres jeux de données disponibles dans la littérature est représentée sur la Figure 3.18.

La première observation que l'on peut faire sur nos résultats de 2019 est qu'ils sont en moyenne supérieurs de 30 % par rapport aux valeurs publiées par Carrel *et al.* [90] malgré une configuration de LINAC similaire. Cette différence n'est pas observée en 2021. Elle peut s'expliquer par le fait que nous disposons d'un échantillon d'UHE environ 20 fois plus massif qu'en 2019. De plus, notre connaissance de la structure de l'échantillon d'UHE utilisé en 2019 étant limitée, le calcul de l'efficacité de détection associée a pu s'en retrouver affecté, notamment pour la prise en compte de l'auto-absorption gamma.

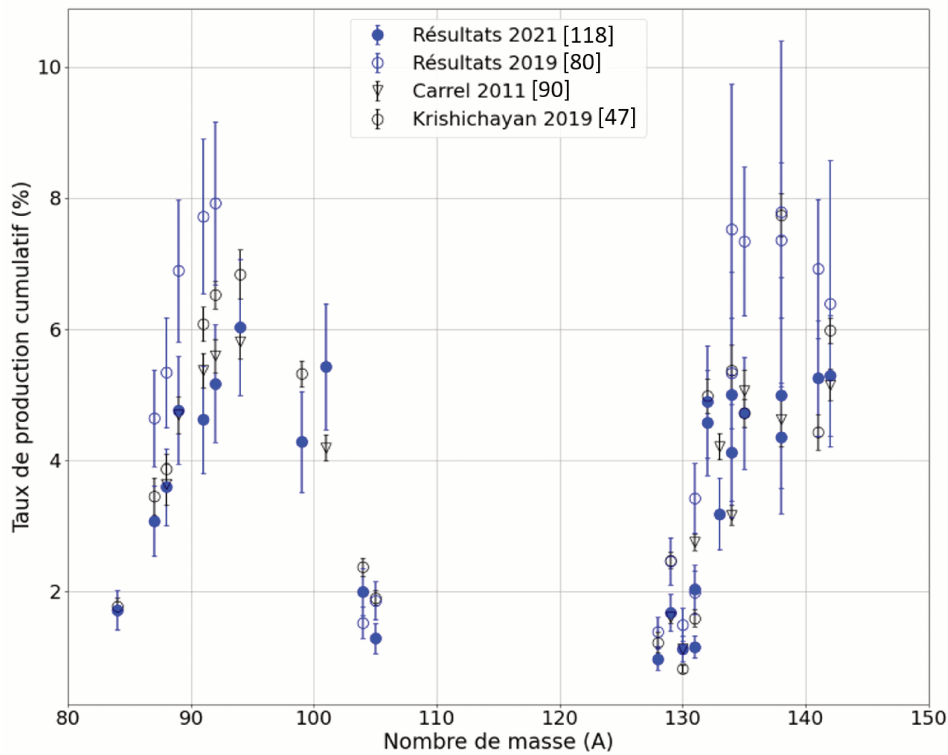


FIGURE 3.18 – Comparaison des taux de productions des produits de photofission de l' ^{235}U mesurés en 2021 avec les résultats de 2019 et les valeurs existantes dans la littérature.

3.4.4.3 ^{239}Pu

La comparaison de nos résultats de 2021 avec les données de la littérature pour les rendements cumulatifs des produits de photofission du ^{239}Pu sont donnés dans le Tableau 3.14. Au-delà des données affichées dans le tableau précédent, on peut signaler que des rendements de photofission relatifs ont récemment été publiés par Parlag *et al.* [119] pour ^{135}I et $^{91\text{m}}\text{Y}$ pour une énergie de fin de *Bremss-trahlung* de 17,5 MeV, *i.e.* une configuration similaire à la nôtre. Cependant, dans cette étude, tous les rendements de photofission sont normalisés à celui de ^{97}Zr publié par Kondrat'ko *et al.* [96] (premier jeu de données publié en 1981 concernant les taux de production des produits de photofission du ^{239}Pu), qui semble significativement inférieur aux autres valeurs publiées plus récemment, et notamment à la valeur que nous mesurons pour ce produit de photofission (voir Tableau 3.14). Un graphique reprenant la comparaison de nos mesures avec les données publiées dans la littérature pour le ^{239}Pu est représenté sur la Figure 3.19.

Les valeurs que nous avons mesurées sont légèrement supérieures mais cohérentes avec les autres données. On peut noter quelques points singuliers comme le rendement cumulatif de photofission de ^{104}Tc obtenu par Krishichayan *et al.* [47], $1,96 \pm 0,14\%$, qui est beaucoup plus faible qu'attendu pour un tel nombre de masse. Nos mesures font état de $6,91 \pm 1,12\%$. Pour comparaison, le rendement de fission neutronique pour ce produit de fission est estimé à $5,69\%$ d'après la base de données ENDF/B-VIII.0 [40]. Les données publiées par Kondrat'ko *et al.* [96] sont globalement faibles et certains points apparaissent comme singuliers, comme le taux de production de ^{105}Rh , à $3,96 \pm 0,20\%$, comparé à notre mesure de $7,08 \pm 1,11\%$ et aux mesures du taux de production de ^{105}Ru (environ 6%) ayant le même nombre de masse. Le rendement de photofission de ^{134}Te fourni par Wen *et al.* [93] semble également sujet à caution, puisqu'il est de $11,6 \pm 0,81\%$, comparé à notre mesure de $4,88 \pm 0,78\%$ et à celle de ^{134}I ayant le même nombre de masse (environ 7%).

Au-delà de ces points singuliers, les différences observées avec les autres valeurs publiées peuvent être plus globalement expliquées par les différentes configurations de mesure mais également par la méthode d'analyse des données. On peut mentionner une connaissance limitée de la structure de l'échantillon de plutonium dans notre cas, ce qui pourrait expliquer en partie pourquoi nos résultats

semblent légèrement supérieurs aux valeurs publiées dans la littérature. De plus, notre échantillon de plutonium n'est pas exclusivement composé de ^{239}Pu , qui ne représente que 83 % de la masse (cf. Tableau 3.2). Idéalement, les taux de production liés aux autres actinides présents (^{240}Pu pour 12 %, ^{242}Pu , ^{241}Am) devraient être étudiés avec des échantillons aussi purs que possible pour évaluer la contribution de chaque isotope, mais nous ne disposons pas de tels échantillons. Ceci reste donc un objectif intéressant pour les laboratoires de métrologie.

TABLEAU 3.14 – Rendements cumulatifs (pour 100 fissions) des produits de photofission du ^{239}Pu et comparaison avec les données publiées.

Faisceau de photons	<i>Bremsstrahlung</i>	<i>Bremsstrahlung</i>	<i>Bremsstrahlung</i>	Monoénergétique	Monoénergétique
Énergie (MeV)	17,5	28,0	22,0	11,0	13,0
Produit de fission	Résultats 2021 [118]	Kondrat'ko 1981 [96]	Wen 2016 [93]	Bhike 2017 [95]	Krishichayan 2019 [47]
^{84}Br	$1,19 \pm 0,19$	-	-	-	-
^{87}Kr	$2,03 \pm 0,32$	-	-	-	$1,45 \pm 0,12$
^{88}Kr	$2,36 \pm 0,36$	$1,62 \pm 0,21$	-	-	$2,08 \pm 0,15$
^{89}Rb (c)	$3,99 \pm 0,61$	-	$3,45 \pm 0,43$	-	-
^{91}Sr	$4,63 \pm 0,72$	$2,89 \pm 0,23$	-	$4,15 \pm 0,51$	$3,91 \pm 0,24$
^{91m}Y (c)	$3,19 \pm 0,56$	-	-	-	-
^{92}Sr	$4,73 \pm 0,76$	-	$4,00 \pm 0,20$	$4,21 \pm 0,49$	$4,19 \pm 0,66$
^{92}Y	$5,42 \pm 0,93$	$3,20 \pm 0,16$	-	-	-
^{93}Y	$4,45 \pm 0,58$	$4,02 \pm 0,20$	-	-	-
^{94}Y (c)	$7,05 \pm 1,13$	-	$4,60 \pm 0,32$	-	$4,71 \pm 0,33$
^{97}Zr	$8,81 \pm 1,41$	$4,63 \pm 0,17$	-	$6,63 \pm 0,73$	$6,78 \pm 0,38$
^{104}Tc (c)	$6,91 \pm 1,12$	-	-	-	$1,96 \pm 0,14$
^{105}Ru	$6,29 \pm 1,01$	-	-	-	$6,16 \pm 0,39$
^{105}Rh	$7,08 \pm 1,11$	$3,96 \pm 0,20$	-	-	-
^{128}Sn	$1,14 \pm 0,18$	-	-	-	$1,18 \pm 0,16$
^{128}Sb	$1,14 \pm 0,19$	-	-	-	-
^{129}Sb	$2,60 \pm 0,42$	-	-	-	$2,82 \pm 0,15$
^{130}Sb	$1,64 \pm 0,26$	-	$1,25 \pm 0,12$	-	$1,36 \pm 0,11$
^{131}Sb (c)	$2,84 \pm 0,45$	-	$2,10 \pm 0,34$	-	-
^{134}Te	$4,88 \pm 0,78$	-	$11,6 \pm 0,81$	-	-
^{134}I	$7,02 \pm 1,16$	-	$5,90 \pm 0,15$	$7,39 \pm 0,89$	-
^{135}I	$5,67 \pm 0,94$	-	-	-	-
^{138}Cs	$8,24 \pm 1,33$	-	$5,50 \pm 0,29$	$6,18 \pm 0,75$	$6,45 \pm 0,37$
^{141}Ba (c)	$7,28 \pm 1,20$	-	-	-	$4,22 \pm 0,31$
^{142}La	$6,27 \pm 1,00$	-	$4,90 \pm 0,29$	-	$5,87 \pm 0,31$
^{143}Ce	$4,48 \pm 0,76$	$3,26 \pm 0,13$	-	$4,41 \pm 0,51$	$3,88 \pm 0,20$

(c) Résultats obtenus avec la mesure nommée « Pu 2 » dans le Tableau 3.4 et la Figure 3.11. Les autres taux de production cumulatifs des produits de photofission du ^{239}Pu sont obtenus avec la mesure « Pu 1 ».

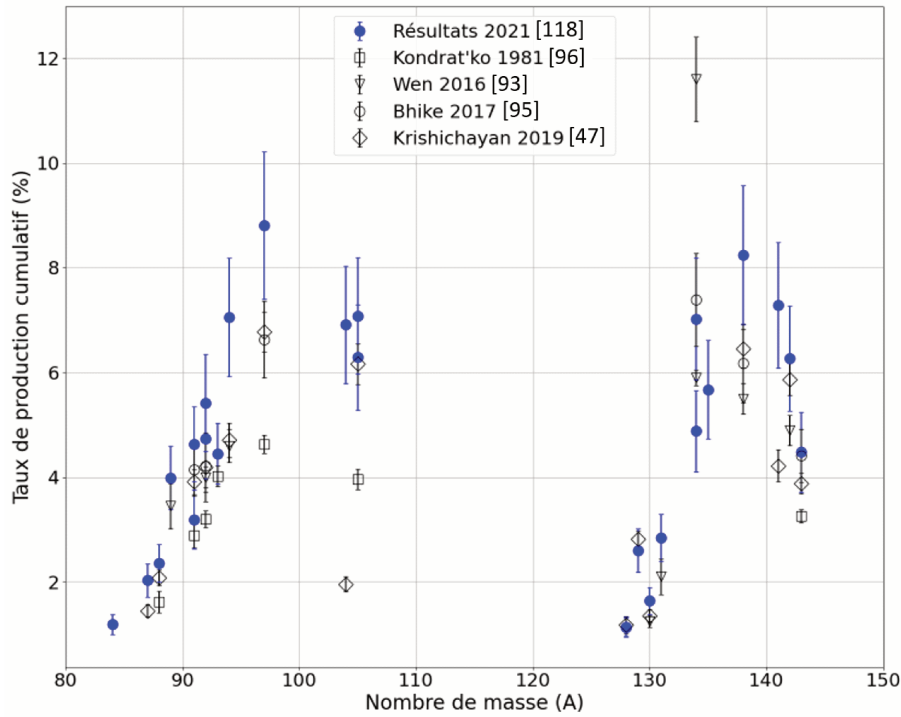


FIGURE 3.19 – Comparaison des taux de productions des produits de photofission du ^{239}Pu mesurés en 2021 avec les valeurs existantes dans la littérature.

3.5 Sélection de couples de produits de photofission pour la différenciation des actinides

3.5.1 Principe de la méthode

Nous avons évoqué précédemment que les sections efficaces de photofission sont du même ordre de grandeur pour tous les actinides. Ainsi, le signal de rayonnements gamma retardés mesuré permet d'estimer la masse totale de matière nucléaire. Cependant, cela ne permet pas directement de déterminer s'il s'agit d'uranium ou de plutonium (avec des activités spécifiques très différentes, en Bq/g, essentielles pour la gestion des déchets radioactifs, en particulier pour l'activité alpha à long terme [120]), ou bien de matière fissile ou fertile (pour des questions de sûreté-criticité lors du transport, de l'entreposage ou du stockage définitif). Cette section explore la possibilité de différencier les actinides en utilisant des ratios de pics de rayonnements gamma retardés émis par leurs produits de photofission. Une information de différenciation peut être obtenue entre l'uranium et le plutonium grâce à leurs différences de distributions en masse des produits de photofission (se référer à l'exemple de la Figure 1.11, Chapitre 1). Cela se traduit par des intensités relatives de pics gamma retardés spécifiques associés à des produits de photofission qui ont différents taux de production en fonction des actinides considérés [24, 66]. La proportion d'actinides d'intérêt, comme par exemple $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$, $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$, ou encore $(^{235}\text{U}+^{239}\text{Pu})/^{238}\text{U}$, peut ainsi être calculée à partir d'un ratio de deux aires nettes du spectre de gamma retardés. L'objectif est de sélectionner les couples de produits de photofission offrant les plus grands écarts dans leurs ratios de pics en fonction des actinides considérés. Prenons l'exemple d'un mélange d' ^{235}U et d' ^{238}U . L'aire nette du pic d'absorption totale du rayonnement gamma retardé d'énergie E_i émis par le produit de photofission j est alors donné par (3.4).

$$A_j(E_i) = \frac{I(E_i)\varepsilon(E_i)N_A}{\lambda_j} \times (1 - e^{-\lambda_j t_{irr}}) \times e^{-\lambda_j t_{refr}} \times (1 - e^{-\lambda_j t_{mes}}) \dots \quad (3.4)$$

$$\dots \times \left[Y_{j5} \frac{\alpha m_U}{M_5} \int_{E_{seuil}}^{E_{max}} \varphi(E) \sigma_5(E) dE + Y_{j8} \frac{(1-\alpha) m_U}{M_8} \int_{E_{seuil}}^{E_{max}} \varphi(E) \sigma_8(E) dE \right]$$

Avec :

- $A_j(E_i)$ l'aire nette du pic photoélectrique du gamma retardé d'énergie E_i émis par le produit de photofission j ,
- $I(E_i)$ l'intensité d'émission du rayonnement gamma d'énergie E_i ,
- $\varepsilon(E_i)$ l'efficacité de détection à l'énergie E_i ,
- N_A la constante d'Avogadro (en mol⁻¹),
- λ_j la constante radioactive du produit de photofission j (en s⁻¹),
- t_{irr} , t_{refr} et t_{mes} les durées d'irradiation, de refroidissement et de comptage (en s),
- Y_{j5} et Y_{j8} les rendements de photofission cumulatifs du produit de photofission j pour l'²³⁵U et l'²³⁸U, respectivement,
- m_U la masse totale d'uranium (en g),
- M_5 et M_8 les masses molaires de l'²³⁵U et l'²³⁸U (en g.mol⁻¹),
- α l'enrichissement, *i.e.* la proportion d'²³⁵U dans le mélange,
- E_{seuil} l'énergie seuil de la réaction de photofission,
- E_{max} l'énergie maximum du faisceau de photons de *Bremsstrahlung*,
- $\varphi(E)$ le flux de photons de *Bremsstrahlung* d'énergie E (en cm⁻².s⁻¹),
- $\sigma_5(E)$ et $\sigma_8(E)$ les sections efficaces de photofission (en cm²) à l'énergie E pour l'²³⁵U et l'²³⁸U.

(3.4) peut être simplifiée selon (3.5) :

$$A_j(E_i) = k_j(E_i) \times m_U \times [Y_{j8}(\alpha - 1) - \Omega\alpha Y_{j5}] \quad (3.5)$$

Où :

- $k_j(E_i)$ (en s.mol⁻¹) est une variable définie comme suit et qui dépend de la constante radioactive du produit de photofission j , de l'intensité d'émission et de l'efficacité de détection de la raie gamma d'énergie E_i , des paramètres temporels de la mesure :

$$k_j(E_i) = \frac{I(E_i)\varepsilon(E_i)N_A}{\lambda_j} \times (1 - e^{-\lambda_j t_{irr}}) \times e^{-\lambda_j t_{refr}} \times (1 - e^{-\lambda_j t_{mes}})$$

- Ω est une constante dépendant du mélange d'actinides. Pour le mélange d'²³⁵U et d'²³⁸U et la configuration du faisceau de photons en 2021 :

$$\Omega = \frac{\frac{1}{M_5} \int_{E_{seuil}}^{E_{max}} \varphi(E)\sigma_5(E)dE}{\frac{1}{M_8} \int_{E_{seuil}}^{E_{max}} \varphi(E)\sigma_8(E)dE} = 1,97$$

- Pour un mélange d'²³⁵U et de ²³⁹Pu avec α la fraction de ²³⁹Pu, $\Omega = 1,21$. Enfin, pour un mélange d'²³⁸U et de ²³⁹Pu où α représente la part de ²³⁹Pu, $\Omega = 2,39$.

Le ratio des aires nettes de raies gamma émises par deux produits de photofission est donné par (3.6) :

$$R = \frac{k_1}{k_2} \times \frac{Y_{18}(\alpha - 1) - \Omega\alpha Y_{15}}{Y_{28}(\alpha - 1) - \Omega\alpha Y_{25}} = \frac{k_1}{k_2} \times R' \quad (3.6)$$

Avec :

- k_1 et k_2 les deux constantes $k_j(E_i)$ introduites ci-dessus. Il est important de mentionner que nous ne nous limitons pas à des ratios de raies gamma proches en énergie. Cela implique que l'efficacité de détection aux deux énergies doit être estimée, ce qui nécessite une localisation des actinides dans le colis de déchets (voir le Chapitre 4),
- α et Ω ayant la même définition que dans (3.4) et (3.5),
- Y_{18} et Y_{15} les taux de production cumulatifs du premier produit de photofission pour l'²³⁸U et l'²³⁵U,

- Y_{28} et Y_{25} les taux de production cumulatifs du second produit de photofission pour l' ^{238}U et l' ^{235}U ,
- R' le ratio corrigé des aires nettes, correspondant au ratio mesuré R multiplié par le ratio des constantes k_2 et k_1 .

Ainsi, l'enrichissement α peut être calculé à partir du ratio corrigé R' selon (3.7).

$$\alpha = \frac{R'Y_{28} - Y_{18}}{R'[Y_{28} - \Omega Y_{25}] - Y_{18} + \Omega Y_{15}} \quad (3.7)$$

L'efficacité de cette méthode de différenciation peut être évaluée en définissant un critère δ de sensibilité à l'incertitude sur R' basé sur la variabilité de l'enrichissement calculé comparée à la variabilité de ce ratio de raies corrigé (3.8).

$$\delta = \frac{d\alpha}{dR'} \frac{R'}{\alpha} = \frac{\Omega(Y_{15}Y_{28} - Y_{25}Y_{18})}{\left[\left(\frac{Y_{18}(\alpha-1) - \Omega\alpha Y_{15}}{Y_{28}(\alpha-1) - \Omega\alpha Y_{25}} \right) (Y_{28} - \Omega Y_{25}) - Y_{18} + \Omega Y_{15} \right]^2} \frac{Y_{18} \frac{\alpha-1}{\alpha} - \Omega Y_{15}}{Y_{28}(\alpha-1) - \Omega\alpha Y_{25}} \quad (3.8)$$

En minimisant ce critère sur une large plage d'enrichissements, les couples de produits de photofission les plus appropriés peuvent être identifiés en fonction de leurs rendements de photofission cumulatifs reportés dans la Section 3.4.

3.5.2 Mélanges d'actinides

3.5.2.1 Différenciation ^{235}U vs. ^{238}U

Le raisonnement détaillé dans la section précédente a permis de mettre en évidence les couples de produits de photofission les plus efficaces pour la différenciation entre l' ^{235}U et l' ^{238}U . Les courbes représentant la variation du critère δ en fonction de la fraction α d' ^{235}U sont données sur la Figure 3.20. Les six couples de produits de photofission semblant les plus efficaces pour discriminer l' ^{235}U et l' ^{238}U sont $^{84}\text{Br}/^{105}\text{Ru}$, $^{105}\text{Ru}/^{128}\text{Sn}$, $^{87}\text{Kr}/^{105}\text{Ru}$, $^{84}\text{Br}/^{104}\text{Tc}$, $^{104}\text{Tc}/^{128}\text{Sn}$ et $^{87}\text{Kr}/^{104}\text{Tc}$. Les courbes donnant l'enrichissement en fonction du ratio de raies corrigé R' sont représentées sur la Figure 3.21. Elles confirment qu'il est possible d'estimer l'enrichissement α avec les différents couples de produits de photofission si R' est mesuré avec une faible incertitude, qui dépendra principalement de la statistique de comptage sur l'aire nette des raies de gamma retardés. À titre d'exemple, une incertitude de 20 % sur R' se traduira par une incertitude relative de 65 % sur l'enrichissement en ^{235}U pour le couple $^{87}\text{Kr}/^{105}\text{Ru}$ et un enrichissement de $\alpha = 0,2$ (incertitude sur α estimée avec $R' = 1 \pm 0,2$ sur la Figure 3.21). Par contre, une incertitude de 20 % sur R' pour le couple $^{84}\text{Br}/^{105}\text{Ru}$ correspond à une incertitude relative de 30 % sur α pour un enrichissement $\alpha = 0,6$ (avec $R' = 0,92 \pm 0,18$ sur la Figure 3.21). La liste des rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission utiles pour la différenciation est donnée dans l'Annexe 6. Certains produits de photofission émettent des rayonnements dont l'énergie est limitée. Par exemple, l'énergie maximum des rayonnements gamma émis par le ^{128}Sn est 680,5 keV. Quant au ^{105}Ru , il émet un gamma retardé de 969,4 keV au maximum, mais avec une faible intensité de 2,1 %. Ceci pourra être un frein à l'utilisation de ces produits de photofission dans le cadre de la différenciation au sein de matrices denses.

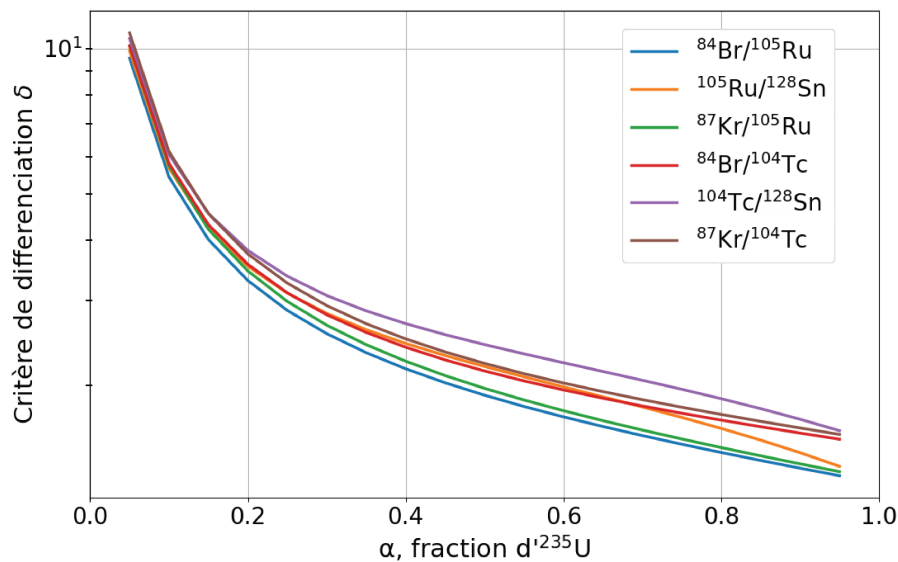


FIGURE 3.20 – Fonction $\delta = f(\alpha)$ pour les 6 meilleurs couples de produits de photofission discriminant ^{235}U et ^{238}U .

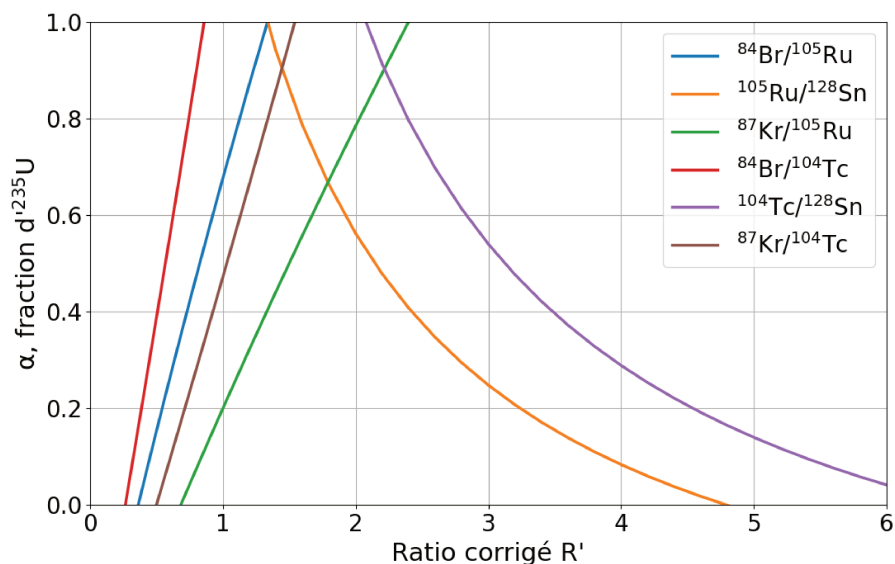


FIGURE 3.21 – Courbes $\alpha = f(R')$ pour les couples de produits de photofission discriminants dans la configuration $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$.

À titre d'essai et de toute première validation, on applique ci-dessous cette méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ sur les spectres de rayonnements gamma retardés enregistrés avec les échantillons nus d'UA et d'UHE qui ont permis la mesure des taux de production des produits de photofission de ^{235}U et ^{238}U .

- Échantillon d'UA

Pour l'échantillon d'UA, l'enrichissement en ^{235}U est $\alpha = 0,003$ puisqu'il est composé à 99,7 % d' ^{238}U . Les six couples de produits de photofissions mis en avant précédemment ont été étudiés pour l'obtention d'une information de discrimination entre ^{235}U et ^{238}U . On se propose d'étudier un ratio de raies par couple de produits de photofission. Les temps de refroidissement et de mesure suivant les 2 h d'irradiation pour chaque produit de photofission sont reportés dans le Tableau 3.15. Les ratios de raies corrigés et les enrichissements calculés associés sont disponibles dans le Tableau 3.16.

TABLEAU 3.15 – Paramètres temporels de refroidissement et de mesure pour les produits de photofission de l'UA observés pour la différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$.

Produit de photofission	$T_{1/2}$	Temps de refroidissement	Temps de mesure
^{84}Br	31,8 min	20,0 min	3,2 h
^{87}Kr	1,3 h	19,0 min	7,6 h
^{104}Tc	18,3 min	19,0 min	1,9 h
^{105}Ru	4,4 h	19,0 min	26,3 h
^{128}Sn	59,1 min	19,0 min	5,6 h

TABLEAU 3.16 – Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ pour l'échantillon d'UA.

PF ₁	PF ₂	E ₁ (keV)	E ₂ (keV)	A ₁ (coups)	A ₂ (coups)	R'	α	α_{min}	α_{max}
^{84}Br	^{105}Ru	881,6	724,3	72263 ± 695	919049 ± 1371	$0,30 \pm 0,04$	-0,07	-0,11	-0,02
^{105}Ru	^{128}Sn	724,3	482,3	919049 ± 1371	93194 ± 1187	$5,12 \pm 0,77$	-0,03	-0,08	0,04
^{84}Br	^{104}Tc	881,6	358,0	72263 ± 695	178773 ± 1125	$0,22 \pm 0,03$	-0,07	-0,12	-0,02
^{87}Kr	^{105}Ru	402,6	724,3	250860 ± 1360	919049 ± 1371	$0,62 \pm 0,07$	-0,04	-0,09	0,01
^{104}Tc	^{128}Sn	358,0	482,3	178773 ± 1125	93194 ± 1187	$7,00 \pm 1,08$	-0,03	-0,08	0,05
^{87}Kr	^{104}Tc	402,6	358,0	250860 ± 1360	178773 ± 1125	$0,45 \pm 0,06$	-0,04	-0,09	0,01

L'incertitude statistique sur l'aire nette d'un pic est calculée par la formule $\sigma(A_i(E_i)) = \sqrt{A_i(E_i) + 2B}$, avec B le fond Compton sous ce pic. L'incertitude relative sur le ratio corrigé R' (se référer à l'équation (3.6)) est calculée comme la combinaison quadratique de l'incertitude sur l'efficacité de détection de 7 %, de l'incertitude sur l'intensité d'émission et de l'incertitude sur la surface du pic pour les deux rayonnements gamma considérés dans le ratio. Les valeurs minimum et maximum de α sont calculées via l'incertitude sur la valeur du ratio corrigé R' .

Toutes les valeurs obtenues pour l'enrichissement α sont négatives pour l'échantillon d'UA mais sont toutefois très proches de zéro. Or, l'enrichissement recherché est $\alpha = 0,003$. La précision sur les aires nettes ne permet pas d'atteindre un résultat si précis, mais il y a une concordance entre les résultats obtenus avec les différents couples de produits de photofission, ce qui permet d'affirmer que l'échantillon étudié ne contient que très peu d' ^{235}U par rapport à l' ^{238}U .

- Échantillon d'UHE

Pour l'échantillon d'UHE, l'enrichissement en ^{235}U est supérieur à $\alpha = 0,90$. On se propose d'étudier un ratio de raies pour chacun des six couples de produits de photofission. Les temps de refroidissement et de mesure suivant les 2 h d'irradiation pour chaque produit de photofission sont reportés dans le Tableau 3.17. Les ratios de raies corrigés et les enrichissements calculés associés sont disponibles dans le Tableau 3.18.

TABLEAU 3.17 – Paramètres temporels de refroidissement et de mesure pour les produits de photofission de l'UHE observés pour la différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$.

Produit de photofission	$T_{1/2}$	Temps de refroidissement	Temps de mesure
^{84}Br	31,8 min	19,9 min	2,8 h
^{87}Kr	1,3 h	5,8 min	7,5 h
^{104}Tc	18,3 min	5,8 min	2,1 h
^{105}Ru	4,4 h	46,2 min	23,2 h
^{128}Sn	59,1 min	42 s	5,9 h

TABLEAU 3.18 – Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ pour l'échantillon d'UHE.

PF ₁	PF ₂	E ₁ (keV)	E ₂ (keV)	A ₁ (coups)	A ₂ (coups)	R'	α	α_{min}	α_{max}
^{84}Br	^{105}Ru	881,6	724,3	27836 ± 387	85493 ± 557	$1,31 \pm 0,16$	0,97	0,82	1,13
^{105}Ru	^{128}Sn	724,3	482,3	85493 ± 557	56919 ± 796	$1,46 \pm 0,22$	0,89	0,73	1,09
^{84}Br	^{104}Tc	881,6	358,0	27836 ± 387	67074 ± 763	$0,84 \pm 0,11$	0,97	0,78	1,16
^{87}Kr	^{105}Ru	402,6	724,3	178305 ± 915	85493 ± 557	$2,29 \pm 0,27$	0,94	0,79	1,08
^{104}Tc	^{128}Sn	358,0	482,3	67074 ± 763	56919 ± 796	$2,28 \pm 0,35$	0,86	0,68	1,11
^{87}Kr	^{104}Tc	402,6	358,0	178305 ± 915	67074 ± 763	$0,93 \pm 0,18$	0,93	0,75	1,10

En faisant la moyenne de l'enrichissement calculé pour les six couples de produits de photofission étudiés, on obtient la valeur $\alpha = 0,93$, qui est très proche de la valeur attendue (que l'on ne peut préciser, mais $\alpha > 0,90$). L'incertitude sur l'enrichissement calculé est relativement large, mais les six résultats obtenus permettent de s'accorder sur le fait que ^{235}U est majoritaire dans cet échantillon.

3.5.2.2 Différenciation entre matière fissile et fertile

Une autre possibilité est la différenciation entre matière fissile et fertile (au sens de la fission neutronique), en regroupant ^{235}U et le ^{239}Pu face à ^{238}U . En effet, la matière fissile est un paramètre de toute première importance dans la gestion des déchets radioactifs pour des questions de sûreté-criticité, et pouvoir la quantifier un objectif majeur à atteindre. Cette différenciation est théoriquement possible car le ^{239}Pu a une section efficace légèrement supérieure à ^{235}U (facteur 1,21 pour une énergie de fin de *Bremsstrahlung* de 17,5 MeV) mais très différente de celle de ^{238}U (facteur 2,39). Les couples utiles pour la différenciation fissile vs. fertile seront donc ceux dont les produits de photofission de ^{235}U et le ^{239}Pu ont des taux de production similaires entre eux et présentent une différence avec ceux de ^{238}U . Les couples respectant ces critères sont $^{128}\text{Sn}/^{134}\text{Te}$, $^{128}\text{Sn}/^{135}\text{I}$ et $^{128}\text{Sn}/^{142}\text{La}$. Les caractéristiques de ces produits de photofission sont disponibles dans l'Annexe 6. Les courbes représentant la proportion d'actinides fissiles α en fonction du ratio corrigé R' sont disponibles sur la Figure 3.22. Elles ont été tracées en effectuant une moyenne de la valeur du paramètre Ω (cf. équation (3.5), dans ce cas, $\Omega = 2,18$) et de la valeur des taux de production entre ^{235}U et le ^{239}Pu . La surface colorée entourant chaque courbe correspond à l'erreur possible en considérant que l'on est soit en présence de ^{235}U ($\Omega = 1,97$ et taux de production de ^{235}U), soit en présence de ^{239}Pu ($\Omega = 2,38$ et taux de production du ^{239}Pu).

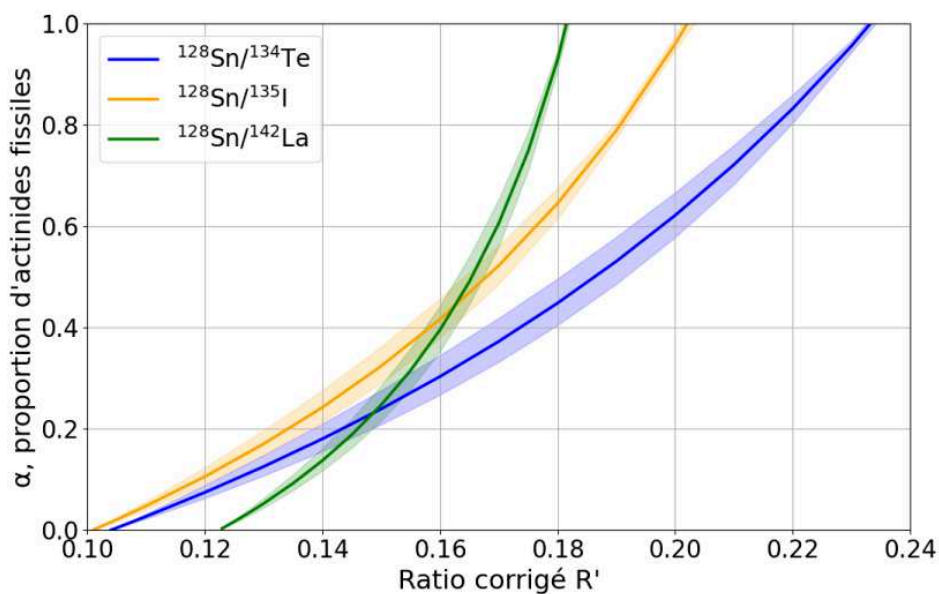


FIGURE 3.22 – Courbes $\alpha = f(R')$ pour les couples de PF discriminants dans la configuration fissile ($^{235}\text{U} + ^{239}\text{Pu}$) vs. fertile (^{238}U).

Afin de tester cette méthode de différenciation fissile vs. fertile, une expérience a été menée en irradiant et en mesurant simultanément les échantillons d'UHE et de plutonium. Le schéma de la configuration de détection est donné sur la Figure 3.23. L'échantillon d'UHE étant plus massif, il a été éloigné du détecteur de 10 cm supplémentaires par rapport à celui de plutonium. Les deux échantillons ont été irradiés simultanément pendant 2 h. Les échantillons de plutonium et d'UHE se trouvaient respectivement à 124,8 cm et 115,4 cm de la cible du LINAC. Les spectres de rayonnements gamma retardés ont été acquis par séquences de 60 s suivies d'une réinitialisation. Le temps mort du détecteur à l'issue de la phase d'irradiation se trouvant à 71 %, une phase de refroidissement de 12 min s'est imposée pour descendre en dessous de 50 % de temps mort.

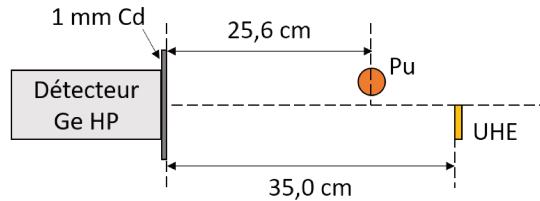


FIGURE 3.23 – Schéma de la configuration de l'expérience comportant les échantillons de plutonium et d'UHE.

La première étape de l'analyse des résultats est de déterminer la composition isotopique « effective » vue par le détecteur puisque les échantillons ne sont pas situés à la même position. Les masses exactes de matière fissile ne pouvant être données pour des raisons de confidentialité, la méthode sera décrite en utilisant seulement les fractions massiques. Il s'agit de considérer que l'échantillon de plutonium se situe au même niveau que celui d'UHE et d'appliquer un facteur correctif, prenant en compte les différences de distance pour l'irradiation et la détection, donné par la formule (3.9).

$$F = \left(\frac{d_{\text{irrad,UHE}}}{d_{\text{irrad,Pu}}} \right)^2 \times \left(\frac{d_{\text{mesure,UHE}}}{d_{\text{mesure,Pu}}} \right)^2 = \left(\frac{124,8}{115,4} \right)^2 \times \left(\frac{35,0}{25,6} \right)^2 = 2,19 \quad (3.9)$$

Il y a donc un facteur de 2,19 sur la masse apparente de plutonium, ce qui amène à une composition apparente de 25,3 % de ^{239}Pu , 69,5 % d' ^{235}U et 5,2 % d' ^{238}U . Ainsi, la fraction massique de matière fissile est $\alpha = 0,948$.

Les spectres de rayonnements gamma retardés sont analysés pour différents temps de refroidissement et de mesure adaptés aux périodes des produits de photofission observés. Les paramètres temporels utilisés sont reportés dans le Tableau 3.19.

TABLEAU 3.19 – Paramètres temporels utilisés pour l'exploitation des spectres de rayonnements gamma retardés pour la différenciation fissile/fertile sur les échantillons de plutonium et d'UHE.

Produit de photofission	$T_{1/2}$	Temps de refroidissement	Temps de mesure
^{128}Sn	59,1 min	1,3 h	7,1 h
^{134}Te	41,8 min	44,9 min	4,3 h
^{135}I	6,6 h	2,0 h	18,6 h
^{142}La	1,5 h	1,0 h	8,0 h

Les résultats issus de l'exploitation des spectres de rayonnements gamma retardés donnant la valeur calculée de la fraction massique de matière fissile sont donnés dans le Tableau 3.20. L'incertitude statistique sur l'aire nette d'un pic est obtenue par la formule $\sigma(A_i(E_i)) = \sqrt{A_i(E_i) + 2B}$, avec B le fond Compton sous ce pic. L'incertitude relative sur le ratio corrigé R' (se référer à l'équation (3.6)) est calculée comme la combinaison quadratique de l'incertitude sur l'efficacité de détection de 7 %, de l'incertitude sur l'intensité d'émission et de l'incertitude sur la surface du pic pour les deux

rayonnements gamma considérés dans le ratio. Dans ce cas particulier où une moyenne des valeurs des rendements des produits de photofission de ^{235}U et du ^{239}Pu est utilisée pour la matière fissile, on se référera à l'enveloppe des courbes présentées sur la Figure 3.22 pour donner un encadrement de la valeur de α en fonction de l'incertitude sur le ratio corrigé R' .

TABLEAU 3.20 – Résultats de la méthode de différenciation fissile/fertile pour les échantillons d'UHE et de plutonium.

PF ₁	PF ₂	E ₁ (keV)	E ₂ (keV)	A ₁ (coups)	A ₂ (coups)	R'	α	α_{min}	α_{max}
^{128}Sn	^{134}Te	482,3	767,2	123898 ± 756	256709 ± 667	0,163 ± 0,025	0,327	0,151	0,562
^{128}Sn	^{135}I	482,3	1260,4	123898 ± 756	618870 ± 1176	0,147 ± 0,016	0,302	0,161	0,488
^{128}Sn	^{142}La	482,3	2397,7	123898 ± 756	113595 ± 488	0,149 ± 0,023	0,230	0,020	0,680

L'enrichissement moyen obtenu pour les trois couples de produits de photofission étudiés est $\alpha = 0,286$. Or, la valeur attendue est de 0,948, ce qui montre que la méthode n'est pour l'instant pas très précise. En particulier, le couple $^{128}\text{Sn}/^{142}\text{La}$ semble peu pertinent au vu de sa courbe $\alpha = f(R')$ qui présente une forte sensibilité à l'incertitude sur le ratio R' (voir Figure 3.22), ce qui se traduit par des incertitudes très élevées sur la valeur de α . Puisque le ^{128}Sn fait partie de tous les couples étudiés et que les trois résultats de fraction de matière fissile sont globalement cohérents entre eux, la prochaine étape pour une mise en place d'une différenciation fissile vs. fertile serait de mesurer à nouveau le taux de production du ^{128}Sn pour la photofission du ^{239}Pu . À titre d'exemple, une diminution de 20 % de la valeur du taux de production moyenné entre ^{235}U et le ^{239}Pu ferait passer α de 0,327 à 0,593. Or, comme mentionné dans la Section 3.4.4.3, les résultats que nous obtenons pour les taux de production du ^{239}Pu sont supérieurs à ceux de la littérature. Une nouvelle mesure des taux de production pour les produits de photofission d'intérêt est donc à considérer pour les futurs travaux sur la différenciation des actinides via la mesure de ratios de raies.

Néanmoins, bien qu'éloignée de la valeur attendue de 0,948, cette méthode de différenciation semble indiquer une proportion significative de matière fissile ($\alpha > 0,2$). À titre de comparaison, nous l'avons testée pour la mesure de l'échantillon d'UA seul. Puisqu'il contient 99,7 % d' ^{238}U , alors une différenciation fissile vs. fertile devrait fournir une fraction massique de matière fissile proche de zéro. Les spectres de rayonnements gamma retardés sont analysés pour différents temps de refroidissement et de mesure adaptés aux périodes des produits de photofission observés. Les paramètres temporels utilisés sont reportés dans le Tableau 3.21. Les résultats issus de l'exploitation des spectres de rayonnements gamma retardés donnant la valeur calculée de la fraction massique de matière fissile sont donnés dans le Tableau 3.22.

TABLEAU 3.21 – Paramètres temporels utilisés pour l'exploitation des spectres de rayonnements gamma retardés pour la différenciation fissile/fertile sur l'échantillon d'UA.

Produit de photofission	T _{1/2}	Temps de refroidissement	Temps de mesure
^{128}Sn	59,1 min	19,0 min	5,6 h
^{134}Te	41,8 min	19,0 min	3,9 h
^{135}I	6,6 h	19,0 min	38,9 h
^{142}La	1,5 h	1,1 h	9,2 h

TABLEAU 3.22 – Résultats de la méthode de différenciation fissile/fertile pour l'échantillon d'UA.

PF ₁	PF ₂	E ₁ (keV)	E ₂ (keV)	A ₁ (coups)	A ₂ (coups)	R'	α	α_{min}	α_{max}
^{128}Sn	^{134}Te	482,3	767,2	93194 ± 1187	448907 ± 1026	0,098 ± 0,015	-0,03	-0,129	0,07
^{128}Sn	^{135}I	482,3	1260,4	93194 ± 1187	1282530 ± 1251	0,095 ± 0,015	-0,03	-0,09	0,05
^{128}Sn	^{142}La	482,3	2397,7	93194 ± 1187	156821 ± 415	0,132 ± 0,020	0,06	-0,06	0,27

Les valeurs obtenues pour la fraction massique de matière fissile sont effectivement proches de zéro. Comme dans l'application précédente, le couple $^{128}\text{Sn}/^{142}\text{La}$ fournit un intervalle de confiance très large de la valeur de α , ce qui n'en fait pas le candidat le plus pertinent. La méthode, bien que perfectible, semble donc capable de distinguer une faible fraction de matière fissile par rapport à des proportions importantes (*i.e.* une classification grossière à ce stade). Des études complémentaires pour des fractions massiques de matière fissile intermédiaires devront être menées expérimentalement.

3.5.2.3 Différenciation ^{235}U vs. ^{239}Pu

La différenciation entre l' ^{235}U et le ^{239}Pu présente un intérêt dans le cas de la mise en évidence de matière essentiellement fissile. Il est alors intéressant d'essayer de distinguer l'uranium du plutonium pour la gestion à long terme des déchets, du fait de leur différence importante d'activité spécifique (Bq/g). En considérant cette fois un mélange d' ^{235}U et de ^{239}Pu , les courbes représentant la variation du critère δ en fonction de la fraction α de ^{239}Pu sont données sur la Figure 3.24. Les six couples de produits de photofission les plus efficaces pour discriminer l' ^{235}U et le ^{239}Pu sont $^{88}\text{Kr}/^{105}\text{Ru}$, $^{87}\text{Kr}/^{105}\text{Ru}$, $^{84}\text{Br}/^{105}\text{Ru}$, $^{89}\text{Rb}/^{105}\text{Ru}$, $^{92}\text{Sr}/^{105}\text{Ru}$ et $^{91}\text{Sr}/^{105}\text{Ru}$. Il est important de mentionner que le ^{84}Br fait partie des candidats pour la discrimination entre l' ^{235}U et le ^{239}Pu et que son taux de production pour la photofission du ^{239}Pu n'avait pas été publié avant nos mesures effectuées en 2021. Les courbes donnant l'enrichissement en fonction du ratio de raies corrigé R' sont représentées sur la Figure 3.25. À noter que la différenciation entre le ^{239}Pu et l' ^{235}U semble plus efficace que la différenciation entre l' ^{235}U et l' ^{238}U , ce qui se traduit par un critère δ plus faible dans le cas présent. Ceci s'explique par la différence sur les nombres de masse un peu plus élevée entre l' ^{235}U et le ^{239}Pu , et donc par un décalage plus important de la distribution en masse des produits de photofission (se référer à l'exemple de la Figure 1.11, Chapitre 1).

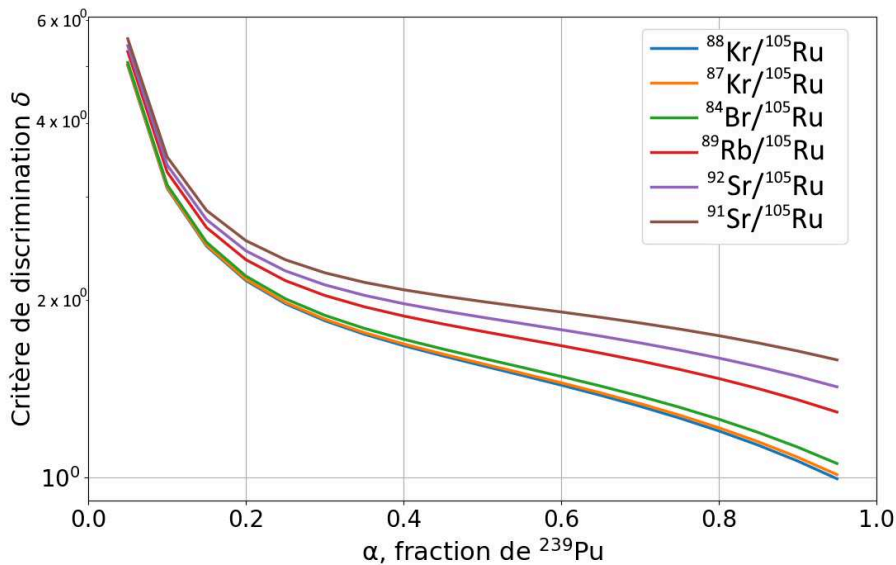


FIGURE 3.24 – Fonction $\delta = f(\alpha)$ pour les 6 meilleurs couples de produits de photofission discriminant ^{235}U et ^{239}Pu .

La liste des rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission utiles pour la différenciation est donnée dans l'Annexe 6. L'énergie des rayonnements gamma émis par certains de ces produits de photofission est limitée. On peut reprendre le cas du ^{105}Ru mentionné pour la différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$, ou encore le cas du ^{91}Sr qui émet au maximum un gamma de 1024,3 keV, cependant avec une intensité conséquente de 33,5 %. La méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ est testée ci-dessous sur les spectres de rayonnements gamma retardés enregistrés avec les échantillons nus de plutonium et d'UHE qui ont permis la mesure des taux de production des produits de photofission du ^{239}Pu et de l' ^{235}U .

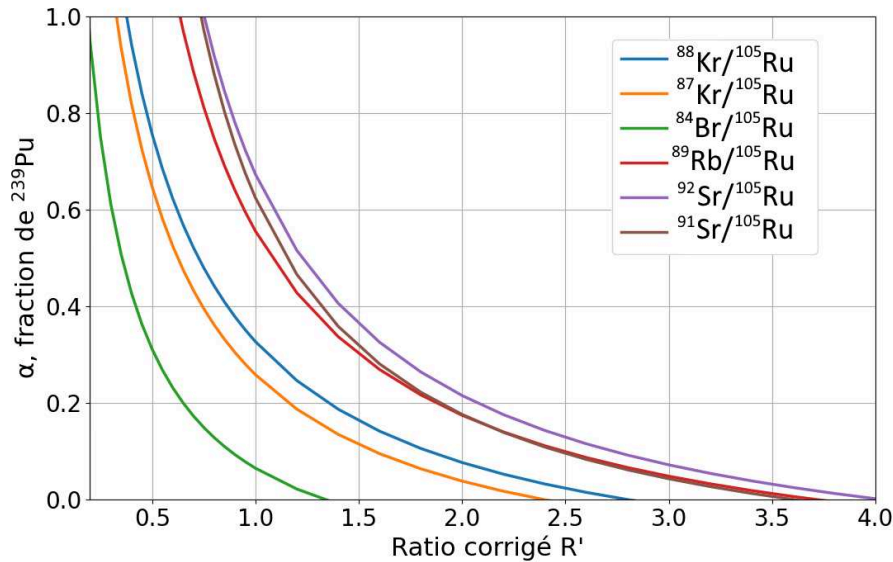


FIGURE 3.25 – Courbes $\alpha = f(R')$ pour les couples de produits de photofission discriminants dans la configuration $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$.

- Échantillon de plutonium

Pour le cas de l'échantillon de plutonium, nous attendons une valeur de α , la fraction massique de ^{239}Pu , proche de 1. Sur les six couples de produits de photofissions mis en avant précédemment, nous en avons étudié cinq pour lesquels les rendements des produits de photofission ont été mesurés dans la configuration de mesure « Pu 1 », ce qui n'est pas le cas du ^{89}Rb (voir Tableau 3.11). On se propose d'étudier un ratio de raies par couple de produits de photofission. Les temps de refroidissement et de mesure suivant les 2 h d'irradiation pour chaque produit de photofission sont reportés dans le Tableau 3.23. Les ratios de raies corrigés et les enrichissements calculés sont disponibles dans le Tableau 3.24.

TABLEAU 3.23 – Paramètres temporels de refroidissement et de mesure pour les produits de photofission du plutonium observés pour la différenciation $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$.

Produit de photofission	$T_{1/2}$	Temps de refroidissement	Temps de mesure
^{84}Br	31,8 min	50,2 min	2,3 h
^{87}Kr	1,3 h	50,2 min	6,8 h
^{88}Kr	2,8 h	50,2 min	16,2 h
^{91}Sr	9,7 h	1,8 h	22,9 h
^{92}Sr	2,6 h	1,8 h	22,9 h
^{105}Ru	4,4 h	1,8 h	22,9 h

TABLEAU 3.24 – Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ pour l'échantillon de plutonium.

PF ₁	PF ₂	E ₁ (keV)	E ₂ (keV)	A ₁ (coups)	A ₂ (coups)	R'	α	α_{min}	α_{max}
^{84}Br	^{105}Ru	1897,6	724,3	24859 ± 312	3994660 ± 2210	0,19 ± 0,03	0,98	0,84	1,17
^{87}Kr	^{105}Ru	402,6	724,3	958383 ± 1801	3994660 ± 2210	0,31 ± 0,04	1,02	0,92	1,14
^{88}Kr	^{105}Ru	2392,1	724,3	525449 ± 752	3994660 ± 2210	0,36 ± 0,04	1,03	0,93	1,14
^{91}Sr	^{105}Ru	1024,3	724,3	1799550 ± 1513	3994660 ± 2210	0,71 ± 0,07	1,06	0,91	1,25
^{92}Sr	^{105}Ru	1383,9	724,3	3168600 ± 1831	3994660 ± 2210	0,79 ± 0,07	1,01	0,88	1,16

Toutes les valeurs obtenues pour l'enrichissement α sont proches de 1 pour l'échantillon de plutonium, ce qui permet d'assurer que l'échantillon étudié est composé essentiellement de ^{239}Pu et non d' ^{235}U .

- Échantillon d'UHE

On peut considérer pour cet exemple d'application que l'échantillon d'UHE est composé exclusivement d' ^{235}U . Nous attendons une valeur de α , la fraction massique de ^{239}Pu , proche de zéro. Nous avons étudié les six couples de produits de photofission identifiés pour la différenciation entre l' ^{235}U et le ^{239}Pu . On se propose d'étudier un ratio de raies par couple de produits de photofission. Les temps de refroidissement et de mesure suivant les 2 h d'irradiation pour chaque produit de photofission sont reportés dans le Tableau 3.25. Les ratios de raies corrigés et les enrichissements calculés associés sont disponibles dans le Tableau 3.26.

TABLEAU 3.25 – Paramètres temporels de refroidissement et de mesure pour les produits de photofission de l'UHE observés pour la différenciation $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$.

Produit de photofission	$T_{1/2}$	Temps de refroidissement	Temps de mesure
^{84}Br	31,8 min	19,9 min	2,8 h
^{87}Kr	1,3 h	5,8 min	7,5 h
^{88}Kr	2,8 h	42 s	17,0 h
^{89}Rb	15,4 min	16,9 min	1,8 h
^{91}Sr	9,7 h	5,8 min	23,9 h
^{92}Sr	2,6 h	42 s	17,0 h
^{105}Ru	4,4 h	46,2 min	23,2 h

TABLEAU 3.26 – Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ pour l'échantillon d'UHE.

PF ₁	PF ₂	E ₁ (keV)	E ₂ (keV)	A ₁ (coups)	A ₂ (coups)	R'	α	α_{min}	α_{max}
^{84}Br	^{105}Ru	881,6	724,3	27836 ± 388	85493 ± 557	1,31 ± 0,16	0,00	-0,02	0,03
^{87}Kr	^{105}Ru	402,6	724,3	178305 ± 915	85493 ± 557	2,09 ± 0,27	0,01	-0,01	0,04
^{88}Kr	^{105}Ru	2231,8	724,3	10624 ± 184	85493 ± 557	2,64 ± 0,30	0,01	-0,01	0,04
^{89}Rb	^{105}Ru	1248,2	724,3	28161 ± 258	85493 ± 557	2,57 ± 0,28	0,09	0,06	0,13
^{91}Sr	^{105}Ru	1024,3	724,3	194351 ± 589	85493 ± 557	3,53 ± 0,37	0,00	-0,02	0,04
^{92}Sr	^{105}Ru	1383,9	724,3	532609 ± 779	85493 ± 557	3,88 ± 0,39	0,01	-0,01	0,03

Toutes les valeurs obtenues pour l'enrichissement α sont proches de zéro pour l'échantillon d'UHE, ce qui permet d'assurer que l'échantillon étudié est composé essentiellement d' ^{235}U et non de ^{239}Pu . Toutefois, le couple $^{89}\text{Rb}/^{105}\text{Ru}$ semble offrir des performances de discrimination un peu moins bonnes que les autres, ce qui pourrait être lié à l'incertitude sur l'estimation des rendements de photofission cumulatifs du ^{89}Rb (*cf.* Section 3.4), qui présente la particularité d'être le noyau fils d'un précurseur de période assez longue, le ^{89}Kr ($T_{1/2} = 3,2 \text{ min}$), par rapport aux précurseurs des autres produits de photofission. Néanmoins, il est possible d'obtenir une information de différenciation entre l' ^{235}U et le ^{239}Pu , qui peut se révéler utile pour la gestion des déchets radioactifs au long terme.

En présence d' ^{238}U essentiellement, donc de matière fertile, il pourrait aussi être intéressant de mettre en évidence, pour la même raison de gestion à long terme, une potentielle présence de ^{239}Pu . Le cas de la différenciation $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ est ainsi traité dans l'Annexe 7, car elle offre de moins bonnes performances à ce stade, a priori en raison de la faible différence des nombres de masse entre l' ^{238}U et le ^{239}Pu .

3.6 Conclusion du chapitre

Les taux de production des produits de photofission sont des données rares dans la littérature, en particulier pour l' ^{235}U et le ^{239}Pu . Cependant, pour proposer une méthode de différenciation entre les actinides dans un but de caractérisation des colis de déchets radioactifs, leurs valeurs doivent être connues. Grâce à la caractérisation du faisceau de *Bremsstrahlung* présentée dans le Chapitre 2, les rendements cumulatifs de certains produits de photofission ont pu être mesurés pour l' ^{238}U , l' ^{235}U et le ^{239}Pu . Lors de la première campagne expérimentale ayant eu lieu en 2019, 49 et 26 rendements de photofission ont été mesurés pour l' ^{238}U et l' ^{235}U , respectivement. Les mesures avec l'échantillon d' ^{238}U sont cohérentes avec les valeurs publiées dans la littérature et viennent enrichir les bases de données avec des taux de production non publiés jusqu'à présent, à savoir ceux de ^{90}Rb , $^{90\text{m}}\text{Rb}$, $^{99\text{m}}\text{Tc}$, $^{128\text{m}}\text{Sb}$, ^{130}Sn , ^{133}Sb , ^{140}Cs et ^{140}La . Les mesures effectuées avec l'échantillon d'UHE ont permis d'estimer et de publier les taux de production de ^{92}Y , $^{131\text{m}}\text{Te}$ et ^{134}I pour la photofission de l' ^{235}U pour la première fois. Globalement, les valeurs obtenues pour les taux de production des produits de photofission de l' ^{235}U sont légèrement plus élevées que les valeurs publiées précédemment dans la littérature. La connaissance limitée de la structure interne de l'échantillon d'UHE et sa faible masse peuvent être incriminées.

Afin d'apporter de nouveaux résultats, une autre campagne expérimentale a été menée en 2021, avec un faisceau de *Bremsstrahlung* différent. Cette fois, nous disposons du même échantillon d'UA qu'en 2019 et de deux nouveaux échantillons : un échantillon beaucoup plus massif d'UHE pour améliorer la statistique de comptage pour le calcul des taux de production pour la photofission de l' ^{235}U par rapport à 2019, et un échantillon de plutonium nous permettant d'accéder aux taux de production des produits de photofission du ^{239}Pu . Au total, 28 taux de production ont été mesurés pour l' ^{238}U , 26 pour l' ^{235}U et le ^{239}Pu . Les valeurs obtenues pour l' ^{238}U sont en accord avec celles obtenues en 2019 et avec celles de la littérature. Concernant l' ^{235}U , les valeurs obtenues en 2021 sont inférieures à celles de 2019 et plus en accord avec les rares jeux de données publiés précédemment. Ceci s'explique par une masse d' ^{235}U plus importante ainsi qu'une meilleure connaissance de l'échantillon d'UHE. Par ailleurs, le taux de production de l' ^{132}I a été mesuré pour la première fois pour la photofission de l' ^{235}U lors de cette campagne. Enfin, les valeurs obtenues pour les taux de production lors de la photofission du ^{239}Pu sont globalement supérieures aux valeurs publiées précédemment. Il serait intéressant d'effectuer à nouveau ces mesures, dans de futurs travaux, soit en utilisant un nouvel échantillon ayant une plus grande teneur en ^{239}Pu , soit en diminuant l'intensité d'émission du LINAC pour limiter le temps mort et le bruit de fond de la mesure. Par ailleurs, les taux de production de ^{84}Br , $^{91\text{m}}\text{Y}$, ^{128}Sb et ^{135}I ont été mesurés pour la photofission du ^{239}Pu pour la première fois.

Les données obtenues au cours de la campagne expérimentale de 2021 ont permis d'identifier des couples de produits de photofission utiles pour la différenciation entre les actinides via la mesure de ratios de pics de rayonnements gamma retardés. Nous nous sommes intéressés à quatre cas de différenciation : $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$, $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$, $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ et enfin fissile/fertile, c'est-à-dire $(^{235}\text{U}+^{239}\text{Pu})/^{238}\text{U}$. Parmi les produits de photofission identifiés dans ces couples, le taux de production de certains n'avait jamais été publié précédemment. À ce stade, les couples de produits de photofission identifiés comme prometteurs ne tiennent pas compte de l'énergie de leurs rayonnements gamma retardés. Ceci sera à considérer pour la différenciation des actinides localisés dans une matrice de déchets, car les rayonnements de faible énergie (quelques centaines de keV) y sont fortement atténués. Le test de la méthode sur différents échantillons a permis de montrer qu'une composition isotopique cohérente pouvait être déduite de la mesure de ratios dans le cas de mélanges de deux actinides. En ce qui concerne la différenciation fissile vs. fertile, les résultats obtenus montrent qu'il est possible de mettre en évidence l'absence de matière fissile, mais pas de déterminer précisément la fraction massique de matière fissile quand celle-ci est élevée. Des études plus poussées doivent être donc encore entreprises, qui passent notamment par une nouvelle mesure des taux de production des produits de photofission du ^{239}Pu . L'application concrète de la méthode de différenciation devra aussi être testée plus amplement sur des mélanges d'actinides en présence d'une matrice.

Chapitre 4

Méthode de localisation des actinides et développements sur la correction des effets de matrice pour la différenciation et la quantification

4.1 Introduction

Les colis de déchets radioactifs 870 L contiennent des déchets technologiques qui en font des colis hétérogènes difficiles à caractériser. En particulier, la localisation des actinides dans ce type de colis est cruciale pour la correction des effets de matrice qui est une étape essentielle pour différencier les actinides et estimer la masse de matière nucléaire présente dans le colis. Une méthode de localisation des actinides dans une matrice en béton basée sur la mesure et la simulation via MCNP 6.1 [104] de ratios de raies de rayonnements gamma retardés émises par le ^{138}Cs a été développée. Les résultats obtenus via cette technique sont utilisés pour tester la différenciation des actinides dont le principe est détaillé dans le Chapitre 3.

4.2 Méthode de localisation des actinides dans une matrice

4.2.1 Présentation de la méthode

La méthode développée est basée sur l'atténuation différentielle des rayonnements gamma retardés de photofission dans deux positions de la matrice, de sorte à ce qu'ils traversent des épaisseurs différentes de béton. Un ratio de raies émises par le même produit de photofission est mesuré pour chaque position. De cette façon, la méthode est indépendante du taux de photofission dans les actinides et du taux de production du produit de photofission en question. Afin de choisir un produit de photofission pertinent pour l'application de cette méthode, plusieurs critères sont à considérer :

- être multi-émetteur, en particulier émettre au moins deux rayonnements gamma dont l'un possède une énergie conséquente, par exemple supérieure à 2,5 MeV, et l'autre suffisamment différente mais supérieure à 1 MeV. Cela permet, d'une part, que les rayonnements gamma aient une énergie suffisante pour traverser la matrice, et d'autre part que le coefficient d'atténuation soit suffisamment différent pour les deux énergies. Les rayonnements gamma retardés concernés doivent également être émis avec une intensité importante,
- avoir un taux de production par photofission élevé. Son nombre de masse doit être d'environ 90-95 pour les produits de fission « légers » et de 135-140 pour les produits de fission « lourds »,
- avoir une période de plusieurs minutes voire dizaines de minutes pour permettre de mesurer la matrice dans deux positions pendant une durée raisonnable.

Peu de produits de photofission respectent tous ces critères. Le ^{138}Cs est le meilleur candidat : il possède une période de 33,4 min, un taux de production d'environ 5 % pour l' ^{235}U et l' ^{238}U et émet deux rayonnements gamma de 1435,9 keV et de 2639,6 keV avec des intensités respectives de 76,3 % et 7,63 %. Le ^{142}La est également un produit de photofission intéressant avec ses multiples rayonnements gamma retardés de 1545,8 keV, 2542,7 keV et 2971,0 keV. Cependant, l'intensité d'émission de ces derniers est inférieure ou égale à 10 %. Par ailleurs, la différence entre les coefficients d'atténuation massique aux énergies des deux raies du ^{138}Cs citées précédemment varie peu en fonction du matériau considéré, comme reporté dans le Tableau 4.1, ce qui constitue un avantage pour l'application de la méthode à des colis de déchets hétérogènes comme les fûts de 870 L.

TABLEAU 4.1 – Différence des coefficients d’atténuation massique ($\frac{\mu}{\rho}$) (en $\text{cm}^2.\text{g}^{-1}$) [121] entre 1435,9 keV et 2639,6 keV pour plusieurs matériaux. Les valeurs entre parenthèses correspondent à l’écart relatif observé par rapport au béton pour les autres matériaux.

Béton	Cellulose	PVC	PE	Air	Aluminium	Acier	Zirconium
$1,45.10^{-2}$	$1,55.10^{-2}$ (6,9 %)	$1,45.10^{-2}$ (0 %)	$1,69.10^{-2}$ (16,6 %)	$1,45.10^{-2}$ (0 %)	$1,34.10^{-2}$ (-7,6 %)	$1,18.10^{-2}$ (-18,6 %)	$1,02.10^{-2}$ (-29,7 %)

La méthode de localisation combine des mesures expérimentales et des calculs par simulation effectués avec le code MCNP. Dans les simulations, une source ponctuelle de photons de 1435,9 keV et 2639,6 keV est placée à chaque position (r,θ) et le flux de photons de chaque énergie est obtenu via un tally F5 (détecteur point), comme schématisé sur la Figure 4.1. Le paramètre r est simulé de 0 à 49 cm par pas de 1 cm et θ entre 0 et 180° par pas de 5° , soit un total de 1800 simulations, puis la moitié de la surface est complétée par symétrie. Le ratio des flux de photons à 1435,9 keV et 2639,6 keV est évalué pour chaque couple (r,θ) et permet d’estimer l’ampleur de la distorsion du ratio de raies liée à l’atténuation différentielle des rayonnements gamma dans la matrice (voir la Figure 4.5.a dans la Section 4.2.2), qui est directement reliée à la différence des coefficients d’atténuation massique du béton aux deux énergies, $\Delta\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_b$, par un coefficient $e^{\Delta\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_b \rho_b e_b}$, avec ρ_b la masse volumique et e_b l’épaisseur de béton. Le degré de distorsion du ratio est défini comme sa normalisation par rapport au ratio de raies théorique sans atténuation (*i.e.* sans la matrice en béton), qui dépend seulement de l’intensité d’émission et de l’efficacité de détection intrinsèque du détecteur Ge HP (nombre de coups dans le pic d’absorption totale d’énergie E par photon entrant dans le cristal à cette énergie) des raies gamma d’intérêt. L’étape finale est de comparer les ratios de raies obtenus expérimentalement dans les positions 1 et 2 avec la carte de distorsion créée via les simulations MCNP pour trouver la position de l’échantillon d’uranium dans la matrice en béton.

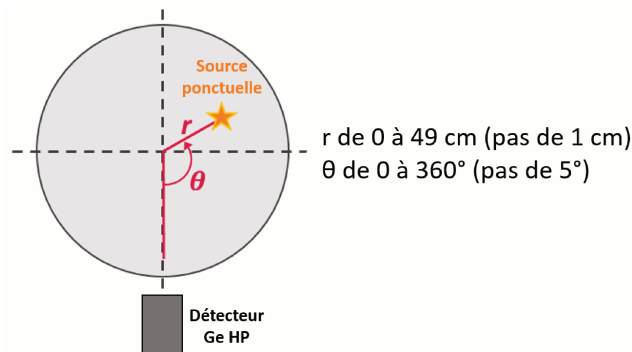


FIGURE 4.1 – Principe de la simulation MCNP de la distorsion du ratio de raies de gamma retardés du ^{138}Cs .

4.2.2 Essais de localisation dans la matrice en béton

Afin de tester expérimentalement la méthode de localisation des actinides dans une matrice, la galette en béton vue sur la Figure 4.2.a, de 1 m de diamètre, soit le même diamètre qu’un colis 870 L, a été utilisée. Elle mesure 15 cm d’épaisseur, a une masse volumique de $2,25 \text{ g.cm}^{-3}$ et possède une virole en acier de 4 mm d’épaisseur. Elle comporte également différents inserts qui permettent d’y placer des échantillons d’actinides à l’aide de supports adaptés et imprimés en 3D (voir Figure 4.2.b). La matrice est située au centre du porte-colis, surélevée grâce à un support en plastique pour limiter l’irradiation de la structure et ainsi réduire le bruit de fond actif. Le centre de la matrice en béton se trouve à 193,6 cm de la cible du LINAC et à 103,8 cm du détecteur Ge HP. Ce dernier est le même que celui utilisé pour la mesure des échantillons d’actinides lors de la campagne de 2021 (*cf.* Chapitre 3, Section 3.2.2.2). Les échantillons utilisés sont ceux d’UA et d’UHE décrits dans le Tableau 3.2 du Chapitre 3).



FIGURE 4.2 – (a) Aperçu de la matrice en béton de 1 m de diamètre et (b) échantillon d'uranium dans son support placé dans l'insert de la matrice.

Les échantillons d'uranium sont placés dans un insert périphérique situé à 40 cm du centre de la matrice. L'épaisseur minimale de béton entre les échantillons et la périphérie de la galette est de 7,2 cm. La matrice en béton est irradiée pendant 2 h avec le faisceau de photons de *Bremsstrahlung* de 17,5 MeV (se référer à la Section 2.2.1.3 du Chapitre 2 pour sa caractérisation) avec l'échantillon d'uranium placé en face de la cible du LINAC. Ensuite, le banc mécanique transfère la matrice depuis la position d'irradiation vers la position de comptage en 22 s, tout en réalisant une rotation de 45° . Cette rotation permet d'augmenter l'épaisseur de béton traversée par les rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission. Après environ 45 min de comptage, durée qui a été adaptée à la demi-vie du ^{138}Cs , une rotation inverse de 45° est effectuée pour replacer l'échantillon d'uranium devant la face d'entrée du détecteur Ge HP, ce qui correspond à une position du banc mécanique identique à celle de la phase d'irradiation. Enfin, les rayonnements gamma retardés sont comptés pendant une durée plus longue dans cette dernière position. Ces étapes sont résumées sur le schéma de la Figure 4.3 et les durées de comptage sont précisées dans le Tableau 4.2 pour chaque échantillon d'uranium.

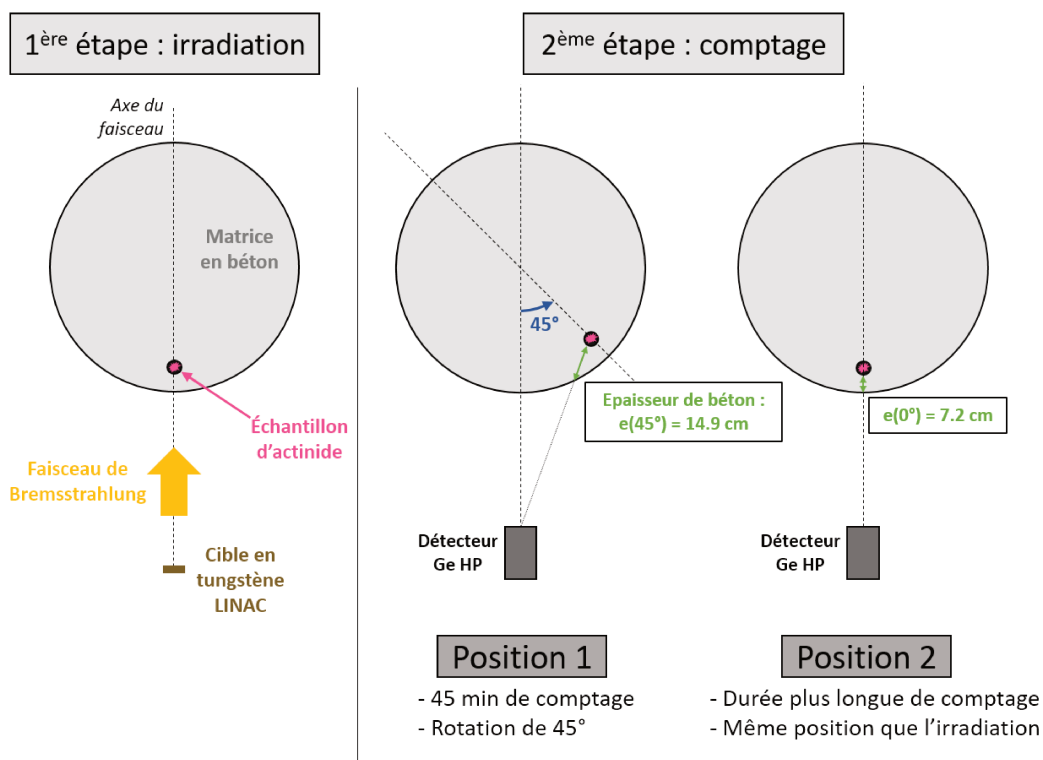


FIGURE 4.3 – Schéma de la partie expérimentale de la méthode de localisation.

TABLEAU 4.2 – Durées de comptage pour les expériences de localisation.

Échantillon	Durée d'irradiation	Durée de comptage Position 1	Durée de comptage Position 2
UA	2 h	44,9 min	1,3 h
UHE	2 h	43,6 min	20,4 h

Les spectres gamma retardés sont enregistrés et réinitialisés toutes les 60 s dans chaque position de la matrice afin de corriger au mieux le temps mort. Le ratio des raies de 1435,9 keV et 2639,6 keV émises par le ^{138}Cs est ensuite calculé en position 1 et 2 grâce à l'extraction des aires nettes des pics à l'aide du logiciel Genie2000.

La Figure 4.4 représente les pics d'absorption totale des raies de 1435,9 keV et 2639,6 keV du ^{138}Cs pour l'échantillon d'UA dans les deux positions de mesure de la matrice en béton. Ils sont représentés de façon conjointe avec le bruit de fond actif, *i.e.* la matrice en béton irradiée sans échantillon d'uranium. Cela montre que les pics du ^{138}Cs sont nettement supérieurs au bruit de fond actif et par conséquent qu'ils constituent un signal utile important. Les aires nettes des pics du ^{138}Cs sont données dans le Tableau 4.3 pour chaque échantillon dans les deux positions.

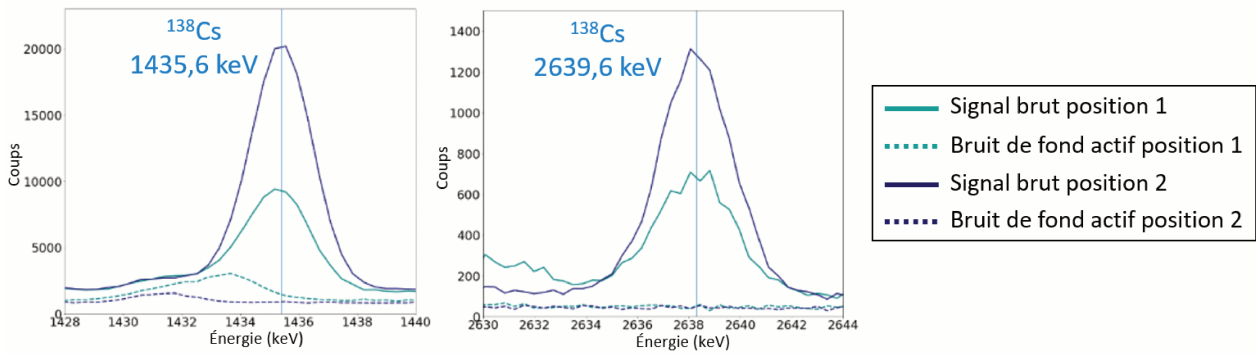


FIGURE 4.4 – Pics d'absorption totale à 1435,9 keV et 2639,6 keV du ^{138}Cs pour l'UA représentés avec le bruit de fond actif dans les deux positions de la matrice en béton.

TABLEAU 4.3 – Aires nettes des pics d'absorption totale du ^{138}Cs pour les échantillons d'UA et d'UHE.

Échantillon	Énergie (keV)	Position 1	Position 2
UA	1435,9	53847 ± 549	131812 ± 1471
	2639,6	5972 ± 279	11069 ± 243
UHE	1435,9	8257 ± 341	34528 ± 1833
	2639,6	760 ± 37	2832 ± 280

La distorsion d'un ratio de raies mesuré est calculée à partir de l'aire nette des pics du ^{138}Cs dans chaque position, conformément à l'équation (4.1).

$$D_i = \frac{N_1}{N_2} \times \frac{I_2 \varepsilon_2}{I_1 \varepsilon_1} \quad (4.1)$$

Avec :

- D_i le coefficient de distorsion du ratio de raies 1435,9 keV/2639,6 keV dans la position i ,
- N_1 et N_2 les aires nettes des pics d'absorption totale à $E_1 = 1435,9 \text{ keV}$ et $E_2 = 2639,6 \text{ keV}$,
- I_1 et I_2 les intensités d'émission des raies gamma d'énergies E_1 et E_2 , soit respectivement 0,763 et 0,0763,
- ε_1 et ε_2 sont les efficacités intrinsèques de détection aux énergies E_1 et E_2 . Elles sont déterminées par simulation MCNP des deux rayonnements gamma du ^{138}Cs . On a ainsi $\varepsilon_1/\varepsilon_2 = 1,60$.

Une fois le coefficient de distorsion obtenu dans les deux positions, il peut être placé sur la carte de distorsion créée à partir des résultats de simulations MCNP qui couvrent toute la surface de la matrice en béton, comme montré sur la Figure 4.5.a. La couleur la plus claire correspond au minimum d'atténuation et la plus foncée au maximum d'atténuation, ce qui correspond au maximum de distorsion du ratio, quand les rayonnements gamma traversent 1 m de béton. L'échelle de 0 à 1 est obtenue en normalisant le coefficient de distorsion du ratio pour chaque couple (r, θ) : l'atténuation minimale est ramenée à une distorsion égale à 1 (la valeur initiale est 0,905) et l'atténuation maximale à une distorsion de 0 (la valeur initiale est 0,046). Ensuite, les positions correspondant au ratio mesuré dans les configurations 1 et 2 sont déterminées via la carte de distorsion simulée de la Figure 4.5.a. Les emplacements pour lesquels la différence entre les distorsions expérimentale et simulée est inférieure à 2,5 % sont tracés en orange et jaune sur la carte simulée (Figure 4.5.b), respectivement pour les positions 1 et 2 de la matrice pour l'échantillon d'UA. Chacune des deux positions de la galette bétonnée produit une trace différente dans le plan (r, θ) pour une valeur donnée de distorsion de ratio. La position déterminée de l'échantillon correspond à l'intersection de ces deux tracés, elle est représentée par la zone bleue sur la Figure 4.5.b.

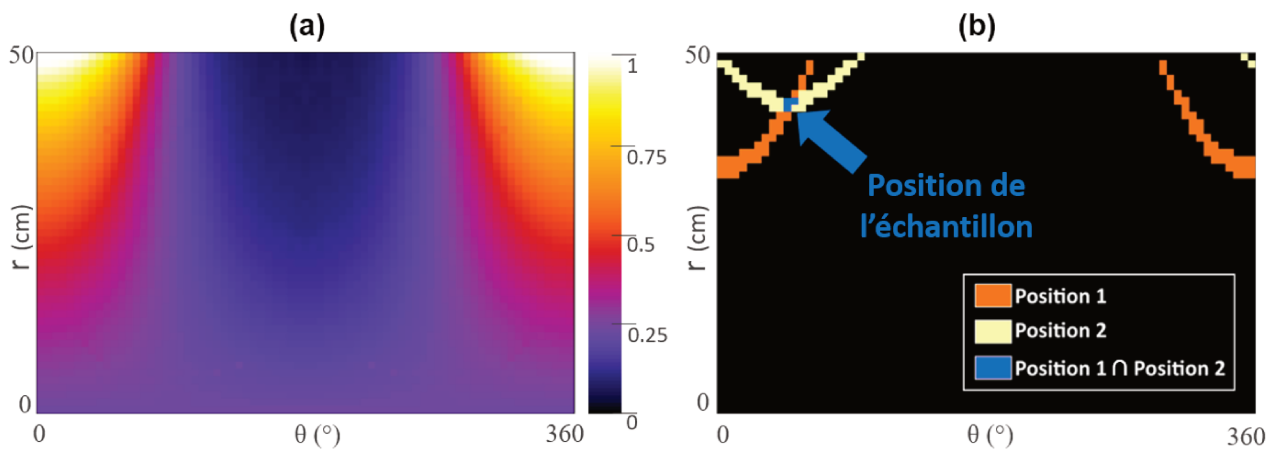


FIGURE 4.5 – (a) Carte de distorsion du ratio de gamma 1435,9 keV/2639,6 keV (^{138}Cs) et (b) Position de l'échantillon d'UA déduite de la distorsion du ratio dans les deux positions de la matrice.

Les résultats de localisation obtenus sont comparés à la position réelle des échantillons d'uranium dans le Tableau 4.4. Les incertitudes sur la localisation, principalement dues à la statistique de comptage et à l'atténuation des rayonnements gamma dans le béton, principalement liée à sa densité, sont discutées dans la Section 4.2.4. Le rayon r obtenu par la technique de localisation est proche de la position réelle, avec moins de 1 cm de différence, pour les échantillons d'UA et d'UHE. L'estimation de l'angle est quant à elle proche de la position réelle pour l'échantillon d'UA mais visiblement différente pour l'échantillon d'UHE, moins massif et dont les résultats sont dégradés à cause d'une moins bonne statistique de comptage (*cf.* Tableau 4.3).

TABLEAU 4.4 – Résultats de localisation issus de l'analyse de la distorsion du ratio de raies de 1435,9 keV et 2639,6 keV du ^{138}Cs .

Échantillon	Position réelle	Résultat de localisation
UA	43 cm, 45°	$(42 \pm 1,5)$ cm, $(47 \pm 10)^\circ$
UHE		(43 ± 3) cm, $(33 \pm 17)^\circ$

4.2.3 Correction des ratios de raies gamma

À partir de la profondeur à laquelle les actinides sont situés dans la matrice, obtenue via la technique de localisation, un facteur de correction peut être calculé pour tout ratio de raies utilisé pour la différenciation des actinides. Initialement, cette méthode de différenciation des actinides par l'utilisation de ratios de raies était uniquement basée sur la mesure de raies dont les énergies étaient proches afin d'éviter l'atténuation différentielle des rayonnements gamma [24]. La possibilité de localisation et donc de correction de l'atténuation différentielle dans ces ratios ouvre des perspectives d'utilisation de rayonnements gamma ayant des énergies très différentes, et donc de couples de produits de fission dont certains peuvent avoir une très bonne efficacité de discrimination. Dans les expériences effectuées et présentées dans la Section 4.2.2, la matrice en béton est entourée par une couche de 4 mm d'acier inoxydable qui sera prise en compte dans les exemples de correction de ratios détaillés ci-après. Pour un mélange de deux actinides m et n dans une matrice, le ratio des aires nettes de raies gamma émises par deux produits de photofission (notés avec les indices 1 et 2) peut s'exprimer par (4.2).

$$R_{12} = \frac{k_1}{k_2} \times \frac{Y_{1m}(\alpha - 1) - \Omega_{mn}\alpha Y_{1n}}{Y_{2m}(\alpha - 1) - \Omega_{mn}\alpha Y_{2n}} \quad (4.2)$$

Il s'agit de la même expression que l'équation (3.6) où R_{12} est le ratio mesuré des aires nettes des raies. Les termes ont la même signification, excepté les coefficients k_j qui intègrent un paramètre supplémentaire prenant en compte l'atténuation par le béton de la matrice et l'acier du cerclage comme précisé dans (4.3).

$$k_j(E_i) = \frac{I(E_i)\varepsilon(E_i)N_A}{\lambda_j} \times (1 - e^{-\lambda_j t_{irr}})e^{-\lambda_j t_{refr}}(1 - e^{-\lambda_j t_{mes}}) \times e^{-\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{b,E_i} \rho_b e_b} \times e^{-\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{a,E_i} \rho_a e_a} \quad (4.3)$$

Avec :

- $I(E_i)$, $\varepsilon(E_i)$, N_A , λ_j , t_{irr} , t_{refr} et t_{mes} définis dans l'équation (3.4) du Chapitre 3,
- $\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{b,E_i}$ et $\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{a,E_i}$ le coefficient d'atténuation massique (en $\text{cm}^2.\text{g}^{-1}$) du béton et de l'acier pour des photons d'énergie E_i [121],
- ρ_b et ρ_a les masses volumiques du béton ($2,25 \text{ g.cm}^{-3}$) et de l'acier ($7,87 \text{ g.cm}^{-3}$),
- e_b et e_a , respectivement les épaisseurs de béton et d'acier traversées par les rayonnements gamma (en cm).

Finalement, le ratio k_1/k_2 de l'équation (4.2) peut être exprimé par (4.4).

$$\begin{aligned} \frac{k_1}{k_2} &= \frac{I_1 \varepsilon_1}{I_2 \varepsilon_2} \times \frac{\lambda_2}{\lambda_1} \times \frac{(1 - e^{-\lambda_1 t_{irr}})e^{-\lambda_1 t_{refr}}(1 - e^{-\lambda_1 t_{mes}})}{(1 - e^{-\lambda_2 t_{irr}})e^{-\lambda_2 t_{refr}}(1 - e^{-\lambda_2 t_{mes}})} e^{\left(\left[\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{E_2} - \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{E_1}\right]_{\text{béton}} \rho_b e_b\right)} e^{\left(\left[\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{E_2} - \left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{E_1}\right]_{\text{acier}} \rho_a e_a\right)} \\ &= \frac{I_1}{I_2} \times C \end{aligned} \quad (4.4)$$

Le facteur de correction C est calculé avec l'épaisseur de béton déduite de l'application de la méthode de localisation des actinides. À titre de validation, on applique cette correction à différents ratios issus des mêmes produits de photofission de l'échantillon d'UA (considéré dans ce cas comme composé à 100 % d' ^{238}U) dans la matrice en béton, voir Tableau 4.5. L'épaisseur d'acier est de 4 mm et celle de béton de 8 cm, correspondant à la détermination du rayon r de 42 cm. Le « ratio réel » correspond dans ce cas au ratio des intensités des deux raies gamma, puisque l'on considère des raies émises par le même produit de photofission. En d'autres termes, l'équation (4.2) se résume ici à $R_{12} = k_1/k_2 = I_1/I_2 \times C$ et, après correction du ratio mesuré k_1/k_2 par le facteur $1/C$, il doit être proche du ratio réel I_1/I_2 .

L'incertitude relative sur le ratio dit réel est calculée comme la combinaison quadratique des incertitudes sur l'intensité d'émission des deux raies gamma issues de la base de données JEFF-3.3 [106]. L'incertitude sur le ratio mesuré k_1/k_2 correspond à la combinaison quadratique de l'incertitude relative sur le ratio des aires nettes des pics d'absorption totale des raies gamma (incertitude statistique)

TABLEAU 4.5 – Correction des ratios de raies gamma pour l'échantillon d'UA dans la matrice en béton, derrière 8 cm de béton et 4 mm d'acier.

Produit de photofission	Énergie des raies (keV)	Intensité des raies (%)	Aire nette (coups)	Ratio réel $\frac{I_1}{I_2}$	Ratio mesuré $\frac{k_1}{k_2}$	Ratio estimé après correction $\frac{k_1}{k_2} \times \frac{1}{C}$	Écart relatif ratios réel et corrigé (%)
^{138}Cs	2218,0	$15,18 \pm 0,31$	24397 ± 475	$1,99 \pm 0,07$	$1,91 \pm 0,08$	$2,07 \pm 0,09$	4,0
	2639,6	$7,63 \pm 0,23$	11069 ± 243				
^{135}I	1131,5	$22,59 \pm 0,72$	25294 ± 232	$0,79 \pm 0,04$	$0,75 \pm 0,02$	$0,80 \pm 0,03$	1,3
	1260,4	$28,70 \pm 0,92$	31593 ± 404				
^{142}La	1545,8	$2,99 \pm 0,15$	4365 ± 144	$0,96 \pm 0,06$	$0,68 \pm 0,10$	$0,95 \pm 0,13$	1,0
	2971,0	$3,13 \pm 0,15$	3817 ± 515				
	2542,7	$10,00 \pm 0,26$	12881 ± 227	$3,19 \pm 0,17$	$2,95 \pm 0,41$	$3,16 \pm 0,44$	0,9
	2971,0	$3,13 \pm 0,15$	3817 ± 515				

et de celle sur le ratio des efficacités de détection intrinsèque. S'agissant d'un ratio d'efficacités, cette dernière est estimée à 2 % avec le modèle MCNP optimisé du détecteur Ge HP, d'éventuels biais systématiques (sous- ou surestimation des zones mortes par exemple) affectant peu le ratio. Enfin, l'incertitude relative sur le ratio corrigé $k_1/k_2 \times 1/C$ estimé après correction de l'atténuation dans le colis est dominée par celle sur le ratio mesuré k_1/k_2 , les incertitudes relatives systématiques sur le ratio des corrections d'atténuation (liées à celles sur les coefficients d'atténuation massique et sur l'épaisseur de béton) ayant là aussi une influence *a priori* limitée sur un ratio. Finalement, l'écart entre les ratios réels I_1/I_2 et corrigés $k_1/k_2 \times 1/C$ est faible, par exemple il est de 4 % pour le ratio 2218,0 keV / 2639,6 keV du ^{138}Cs (pour rappel en utilisant les résultats de localisation de l'UA obtenus avec le ratio 1435,9 keV / 2639,6 keV du ^{138}Cs). En se basant sur ces premiers résultats encourageants, la méthode de différenciation des actinides dans la matrice en béton est testée dans la Section 4.3.2.

4.2.4 Limitations de la méthode

La plus grande source d'incertitude sur le ratio de raies mesuré est celle sur l'aire nette des pics d'absorption totale, en lien avec la statistique de comptage. La sensibilité de la méthode de localisation vis-à-vis d'une fluctuation des ratios de raies gamma dans les deux positions de mesure a été étudiée en faisant varier ces deux ratios indépendamment entre -25 % et +25 %. Les coordonnées (r, θ) sont calculées à partir des ratios de raies mesurés avec l'échantillon d'UA dans les positions 1 (ratio R_1) et 2 (ratio R_2). L'effet sur r et θ d'une variation de ± 25 % sur R_1 et R_2 est reporté sur la Figure 4.6.a et la Figure 4.6.b, respectivement, montrant une sensibilité différente des paramètres r et θ aux variations des ratios de raies du ^{138}Cs . Le paramètre radial r a une faible sensibilité et présente un écart maximal de -22 % (avec une variation de -25 % sur R_1 et R_2) tandis que le paramètre angulaire θ est très sensible aux variations des ratios et peut changer de 230 % (avec +25 % sur R_1 et -25 % sur R_2).

La méthode de localisation reposant sur la différence d'atténuation entre deux raies gamma à 1435,9 keV et 2639,6 keV du ^{138}Cs , nous avons aussi étudié l'influence d'une forte incertitude sur la densité du béton. On peut rappeler que l'influence de l'incertitude sur les coefficients d'atténuation massique des éléments constitutifs du béton et sur la composition même de ce dernier est du second ordre dans ce domaine d'énergie où l'effet Compton est prédominant. La carte de distorsion utilisée pour localiser les échantillons d'uranium (Figure 4.5.a) a été obtenue avec une masse volumique de $2,25 \text{ g.cm}^{-3}$ pour le béton. L'influence sur la localisation d'un changement de densité de ± 50 % autour de cette valeur a été étudiée. Les écarts relatifs sur r et θ en fonction de ceux sur la densité de la matrice en béton sont montrés respectivement sur la Figure 4.7.a et la Figure 4.7.b. Globalement, r et θ sont peu sensibles à la densité du béton en utilisant le ratio de raies 1435,9 keV / 2639,6 keV du ^{138}Cs . L'erreur de localisation est plus importante lorsque la densité est sous-estimée comparée à la valeur réelle, une sous-estimation de la densité de 50 % (*i.e.* $1,12 \text{ g.cm}^{-3}$ au lieu de $2,25 \text{ g.cm}^{-3}$ pour la masse volumique) induisant une erreur de 17 % sur r et de 40 % sur θ , tandis qu'une surestimation de 50 % ($3,37 \text{ g.cm}^{-3}$ au lieu de $2,25 \text{ g.cm}^{-3}$) produit seulement une erreur de 6,2 % sur r et 11,2 % sur θ .

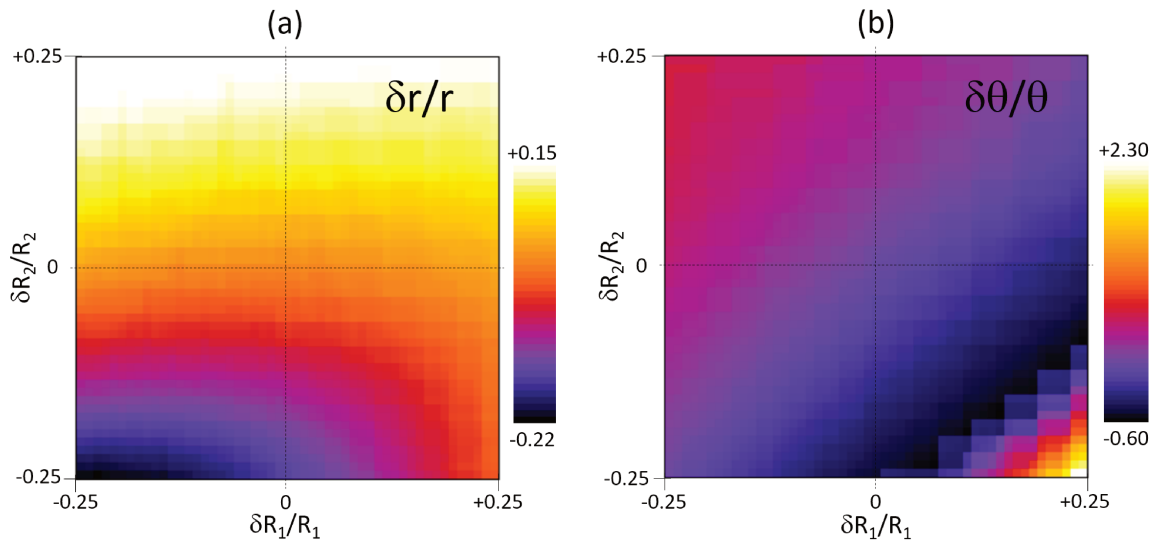


FIGURE 4.6 – Sensibilité (a) du paramètre radial r et (b) du paramètre angulaire θ en fonction de la variabilité du ratio de raies 1435,9 keV/2639,6 keV dans les positions 1 et 2 (R_1 et R_2 , respectivement).

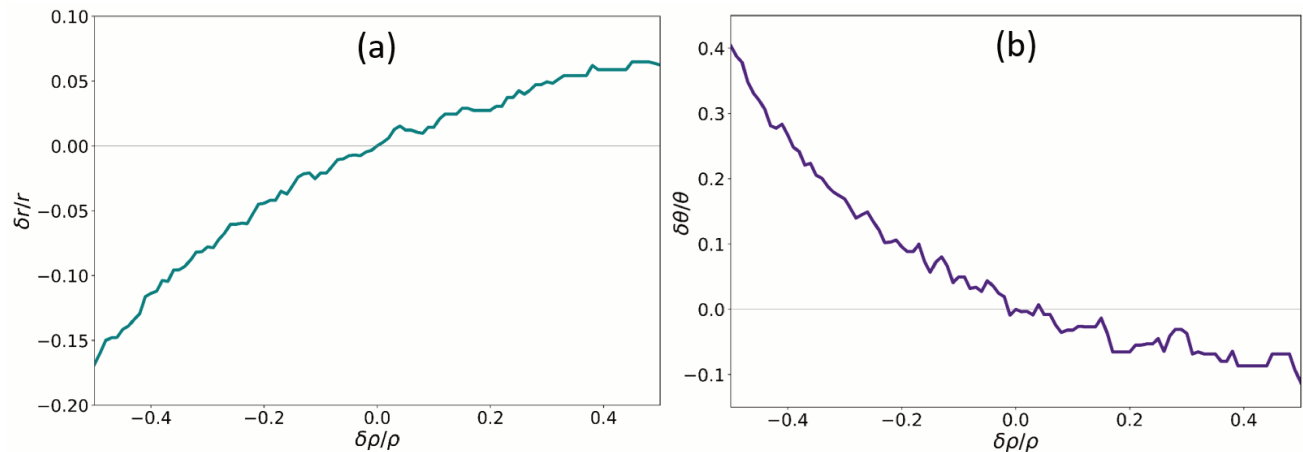


FIGURE 4.7 – Sensibilité des paramètres r (graphe de gauche) et θ (graphe de droite) en fonction de la variabilité de la masse volumique du béton.

In fine, la sensibilité de la méthode de localisation est principalement liée à l'incertitude statistique sur les ratios de raies gamma dans les deux positions angulaires de la mesure. On notera que le paramètre θ est bien plus sensible que le paramètre radial r aux fluctuations statistiques, ce dernier étant le plus important pour l'évaluation du taux de photofission dans les échantillons en vue de la quantification des actinides. En effet, le colis de déchets sera en rotation durant la phase d'irradiation et compte tenu de la directivité du faisceau photonique interrogateur, le taux de photofission dépend essentiellement de la profondeur et seule la connaissance de r est cruciale pour estimer le taux de photofission dans les matériaux nucléaires. La connaissance de θ est plus importante pour l'étape de détection des rayonnements gamma retardés, dans l'optique de positionner un éventuel point chaud en face du détecteur après sa localisation. Concernant ce dernier point, nous verrons au Chapitre 5 (Section 5.4.2) que des alternatives sont à l'étude pour localiser rapidement un point chaud durant la phase d'irradiation, avec des scintillateurs pour une détection grossière (non spectroscopique) en ligne du rayonnement gamma retardé de photofission (à haute énergie pour s'affranchir des rayonnements gamma d'activation des matériaux non nucléaires).

4.3 Différenciation et quantification des actinides au sein d'une matrice

4.3.1 Introduction

Dans cette section, on propose tout d'abord de réutiliser les résultats de localisation obtenus dans la Section 4.2.2 afin d'appliquer la méthode de différenciation des actinides au sein d'une matrice. Pour ce faire, les spectres de rayonnements gamma retardés enregistrés avec les échantillons d'uranium placés dans la galette en béton sont analysés et l'atténuation des rayonnements au sein de la matrice est prise en compte. Dans un second temps, une étude couplant résultats expérimentaux et simulations MCNP est effectuée afin de mettre en évidence les premières limites et perspectives d'étude concernant la quantification des actinides au sein d'une matrice.

4.3.2 Différenciation des actinides

4.3.2.1 Uranium appauvri

La différenciation des actinides au sein d'une matrice a tout d'abord été testée sur l'échantillon d'UA avec les mêmes spectres de rayonnements gamma retardés que pour le test de la méthode de localisation. La masse importante d'uranium ($\approx 200\text{ g}$, voir le Tableau 3.2 du Chapitre 3) permet de mesurer un nombre suffisant de rayonnements gamma utiles pour la différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ avec le détecteur Ge HP. Les spectres analysés sont ceux de l'UA dans la « position 2 » de la matrice (voir Figure 4.3). L'échantillon d'UA se situe en face du détecteur dans un des inserts périphériques de la matrice en béton. Le temps de refroidissement est de 44,9 min (en raison de la mesure préalable dans la « position 1 ») et la durée de comptage est de 1,3 h (*cf.* Tableau 4.2). Pour rappel, la position de l'échantillon d'UA déduite via la méthode de localisation est $(42 \pm 1,5)$ cm pour le paramètre radial r et $(47 \pm 10)^\circ$ pour le paramètre angulaire θ . Seul le paramètre r représentant la profondeur dans la matrice en béton sera considéré ici, une méthode industrielle d'IPA devant en effet irradier le colis en rotation pour homogénéiser le taux de photofission en angle, le faisant ainsi dépendre presque exclusivement de la profondeur. Les aires nettes des pics de rayonnements gamma retardés appartenant aux produits de photofission identifiés pour la différenciation entre l' ^{235}U et l' ^{238}U (se référer à la Section 3.5.2.1 du Chapitre 3) sont extraites avec le logiciel Genie2000.

Les différents couples de produits de photofission ainsi que les aires nettes des pics de rayonnements gamma retardés sont reportés dans le Tableau 4.6 pour les ratios fournissant des résultats d'enrichissement proches de celui attendu ($\alpha = 0,003$). Tous les ratios de raies étudiés, y compris ceux donnant des valeurs de α aberrantes, sont donnés dans l'Annexe H. Des explications y sont fournies concernant les rayonnements gamma retardés qui ne peuvent être utilisés dans ce cas concret. Les ratios mesurés (directement issus des aires nettes) sont corrigés via le ratio des coefficients associés à chaque rayonnement gamma retardé prenant en compte les caractéristiques de chaque produit de photofission (constante radioactive), les paramètres temporels de la mesure (irradiation, refroidissement, comptage), les paramètres liés à chaque énergie de rayonnement gamma retardé (intensité d'émission, efficacité de détection intrinsèque et atténuation par la matrice), comme détaillé dans les équations (4.2) et (4.3).

L'encadrement de la valeur du ratio de raies corrigé, entre R'_{min} et R'_{max} est obtenu en prenant en compte l'incertitude sur le ratio corrigé dans les valeurs minimale et maximale de l'épaisseur de béton obtenues via l'incertitude liée à la méthode de localisation. Pour une épaisseur de béton donnée, l'incertitude sur le ratio corrigé R' est calculée comme la combinaison quadratique des incertitudes sur la surface nette des pics, les intensités d'émission [106] et l'efficacité de détection. Les valeurs d'enrichissement associées, α_{min} et α_{max} sont ensuite déduites des valeurs R'_{min} et R'_{max} .

TABLEAU 4.6 – Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ pour l'échantillon d'UA dans la matrice en béton.

PF ₁	PF ₂	E ₁ (keV)	E ₂ (keV)	A ₁ (coups)	A ₂ (coups)	R'	R' _{min}	R' _{max}	α	α _{min}	α _{max}
⁸⁴ Br	¹⁰⁵ Ru	1897,6	724,3	1969 ± 144	25588 ± 1571	0,33	0,24	0,44	0,03	-0,14	0,08
		2484,1	724,3	1192 ± 112	25588 ± 1571	0,48	0,34	0,64	0,13	-0,02	0,31
		3927,5	724,3	981 ± 73	25588 ± 1571	0,49	0,34	0,68	0,14	-0,02	0,34
		3235,3	724,3	243 ± 75	25588 ± 1571	0,36	0,20	0,57	0,00	-0,19	0,23
¹⁰⁵ Ru	¹²⁸ Sn	469,4	482,3	5647 ± 599	5084 ± 372	5,09	4,06	6,13	-0,02	-0,09	0,08
⁸⁴ Br	¹⁰⁴ Tc	1897,6	535,1	1969 ± 144	2005 ± 337	0,35	0,22	0,50	0,13	-0,07	0,39
		3235,3	535,1	243 ± 75	2005 ± 337	0,38	0,19	0,63	0,18	-0,13	0,61
⁸⁷ Kr	¹⁰⁵ Ru	2554,8	724,3	5595 ± 160	25588 ± 1571	0,87	0,67	1,12	0,12	-0,01	0,27
		2558,1	724,3	2117 ± 95	25588 ± 1571	0,78	0,59	1,01	0,06	-0,06	0,20
		2011,9	724,3	1699 ± 96	25588 ± 1571	0,78	0,60	0,99	0,06	-0,05	0,19
¹⁰⁴ Tc	¹²⁸ Sn	535,1	482,3	2005 ± 337	5084 ± 372	7,84	5,80	9,93	-0,07	-0,15	0,06

Tout d'abord, on peut remarquer que la statistique de comptage est faible pour certaines raies. Par exemple, seulement 243 coups sont enregistrés pour la raie à 3235,3 keV du ⁸⁴Br. En particulier, la faible statistique pour les raies de cet isotope est explicable par son faible taux de production par photofission, de l'ordre de 1 % pour l'²³⁸U (voir le Tableau 3.9 du Chapitre 3), et le temps de refroidissement de 45 min qui est grand par rapport à sa période de 32 min. Par conséquent, l'incertitude sur la surface nette des pics est également élevée et se répercute dans l'incertitude sur l'enrichissement. Une méthode de localisation angulaire en ligne (comme évoqué plus haut et décrit dans le Chapitre 5) permettrait d'améliorer significativement la statistique de comptage en permettant de positionner la matière nucléaire devant le détecteur Ge HP immédiatement après l'irradiation.

Les valeurs d'enrichissement obtenues reportées dans le Tableau 4.6 sont faibles comme attendu mais très disparates, allant de -0,07 à 0,18 hors incertitudes. Les produits de photofission ⁸⁴Br et ⁸⁷Kr combinés à ¹⁰⁵Ru ou ¹⁰⁴Tc sont particulièrement intéressants puisqu'ils possèdent plusieurs raies exploitables. Par contre, le ¹²⁸Sn et le ¹⁰⁴Tc dans cette configuration ne possèdent chacun qu'une raie exploitable, respectivement à 482,3 keV avec 5084 ± 372 coups et à 535,1 keV avec 2005 ± 337 coups. La moyenne de l'enrichissement sur les 11 ratios reportés ici est α = 0,07 alors que l'enrichissement attendu est α = 0,003. Pour certains ratios, la plage d'enrichissement fournie est particulièrement étendue, comme par exemple celui de 3235,3 keV et 535,1 keV du couple ⁸⁴Br/¹⁰⁴Tc, avec -0,13 < α < 0,61. Cela est directement lié à l'incertitude sur le ratio corrigé R', qui prend en compte à la fois l'incertitude sur la position dans la matrice, mais également les incertitudes sur les surfaces nettes (de 31 % pour la raie à 3235,3 keV et 17 % pour la raie à 535,1 keV) et sur les intensités d'émission (de 18 % pour la raie à 3235,3 keV et 8 % pour la raie à 535,1 keV). La même problématique se pose pour d'autres ratios de raies. On comprend alors que la statistique de comptage, au même titre que pour l'application de la technique de localisation, mais aussi les données nucléaires, seront un facteur limitant pour la différenciation des actinides. Une moyenne pondérée par l'inverse de l'incertitude au carré sur chaque valeur d'enrichissement, estimée par exemple grâce à la largeur de son intervalle de confiance α_{max} - α_{min}, pourrait être envisagée pour privilégier les couples de raies les plus favorables.

4.3.2.2 Uranium enrichi et uranium appauvri

Un cas de figure complémentaire à l'échantillon d'UA seul dans la matrice a été testé. Il s'agit des échantillons d'UA et d'UHE (utilisés pour la campagne expérimentale de 2021, voir le Tableau 3.2 du Chapitre 3) irradiés et mesurés simultanément. Les deux échantillons superposés verticalement (pour qu'ils ne s'écrantent pas) se situent dans un des inserts périphériques de la matrice en béton. Ils sont irradiés pendant 2 h dans l'axe du faisceau, refroidis pendant 5,4 min et comptés en face du détecteur pendant 4,8 h. La technique de localisation n'a pas été testée sur cette configuration d'échantillons. Étant donné que la masse d'uranium est légèrement plus élevée que dans le cas de l'échantillon d'UA seul, on peut espérer obtenir un résultat au moins aussi bon que dans la section précédente pour la localisation. On réutilisera donc la profondeur à laquelle a été localisé l'échantillon d'UA dans

la Section 4.2.2, soit $(42 \pm 1,5)$ cm, et donc une épaisseur de béton traversée de $(8 \pm 1,5)$ cm. La composition isotopique pour la somme des deux échantillons conduit à un enrichissement en ^{235}U égal à $\alpha = 0,04$.

Les différents couples de produits de photofission ainsi que les aires nettes des pics de rayonnements gamma retardés sont reportés dans le Tableau 4.7 pour les ratios fournissant des résultats d'enrichissement proches de celui attendu. Tous les ratios de raies étudiés, y compris ceux donnant des valeurs de α aberrantes, sont donnés dans l'Annexe I. Des explications y sont fournies concernant les rayonnements gamma retardés qui ne peuvent être utilisés dans ce cas concret.

TABLEAU 4.7 – Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ pour les échantillons d'UA et d'UHE dans la matrice en béton.

PF ₁	PF ₂	E ₁ (keV)	E ₂ (keV)	A ₁ (coups)	A ₂ (coups)	R'	R' _{min}	R' _{max}	α	α_{min}	α_{max}
^{84}Br	^{105}Ru	1897,6	724,3	6996 ± 593	88584 ± 2356	0,27	0,20	0,35	-0,11	-0,19	-0,02
		1897,6	469,4	6996 ± 593	68805 ± 2959	0,33	0,23	0,45	-0,04	-0,16	0,10
		1015,9	724,3	4627 ± 378	88584 ± 2356	0,39	0,31	0,48	0,04	-0,06	0,14
		1015,9	469,4	4627 ± 378	68805 ± 2959	0,48	0,36	0,63	0,14	0,00	0,29
		2484,1	724,3	3984 ± 105	88584 ± 2356	0,36	0,27	0,47	0,00	-0,11	0,12
		2484,1	469,4	3984 ± 105	68805 ± 2959	0,44	0,31	0,61	0,09	-0,06	0,28
		3927,5	724,3	3618 ± 129	88584 ± 2356	0,41	0,29	0,55	0,05	-0,08	0,21
		3927,5	469,4	3618 ± 129	68805 ± 2959	0,50	0,34	0,72	0,15	-0,03	0,39
		3235,3	724,3	908 ± 43	88584 ± 2356	0,30	0,21	0,42	-0,07	-0,18	0,07
		3235,3	469,4	908 ± 43	68805 ± 2959	0,37	0,24	0,55	0,01	-0,14	0,21
^{105}Ru	^{128}Sn	724,3	482,3	88584 ± 2356	15436 ± 684	6,87	5,49	8,37	-0,13	-0,18	-0,05
		469,4	482,3	68805 ± 2959	15436 ± 684	5,59	4,66	6,54	-0,06	-0,11	0,01
^{87}Kr	^{105}Ru	402,6	724,3	48420 ± 775	88584 ± 2356	0,46	0,38	0,56	-0,15	-0,20	-0,08
		402,6	469,4	48420 ± 775	68805 ± 2959	0,57	0,48	0,65	-0,08	-0,13	-0,02
		2554,8	724,3	17372 ± 598	88584 ± 2356	0,95	0,73	1,21	0,17	0,03	0,33
		2558,1	724,3	7157 ± 280	88584 ± 2356	0,92	0,71	1,18	0,15	0,01	0,31
		2011,9	724,3	5298 ± 317	88584 ± 2356	0,86	0,67	1,08	0,11	0,00	0,25

La statistique de comptage est nettement meilleure pour ce cas, comparée au cas de l'UA seul dans la matrice. Cela s'explique par un temps de refroidissement plus court (5,4 min contre 44,9 min dans le cas précédent) et par un temps de comptage plus long (4,8 h contre 1,3 h). Par conséquent, il y a 17 ratios de raies exploitables contre 11 dans le cas précédent. La moyenne de l'enrichissement trouvé sur les 17 ratios reportés ici est $\alpha = 0,02$ pour un enrichissement attendu de 0,04, alors que cette moyenne était de 0,07 dans le cas de l'UA seul pour un enrichissement attendu de 0,003. Toutefois, même pour ce cas plus favorable, il semble difficile d'estimer l'enrichissement avec un intervalle de confiance étroit étant donné la variabilité des valeurs obtenues avec les différents ratios de raies mesurés.

4.3.2.3 Uranium enrichi

Le dernier cas étudié est l'échantillon d'UHE dans la matrice en béton, qui a également été considéré pour le test de la méthode de localisation. Les spectres analysés sont ceux enregistrés dans la « position 2 » de la matrice (voir Figure 4.3). L'échantillon d'UHE se situe en face du détecteur dans un des inserts périphériques de la matrice en béton. Le temps de refroidissement est de 43,6 min et la durée de comptage est de 20,4 h (*cf.* Tableau 4.2). La précision de la technique de localisation est dégradée pour l'UHE comparé à l'UA étant donné sa masse plus de 20 fois moins importante. La profondeur de l'échantillon déduite est (43 ± 3) cm, soit une épaisseur de béton de (7 ± 3) cm. Les différents couples de produits de photofission ainsi que les aires nettes des pics de rayonnements gamma retardés sont reportés dans le Tableau 4.8 pour les ratios fournissant des résultats d'enrichissement proches de celui attendu. Tous les ratios de raies étudiés, y compris ceux donnant des valeurs de α aberrantes, sont donnés dans l'Annexe J. Des explications y sont fournies concernant les rayonnements gamma retardés qui ne peuvent être utilisés dans ce cas concret.

TABLEAU 4.8 – Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ pour l'échantillon d'UHE dans la matrice en béton.

PF ₁	PF ₂	E ₁ (keV)	E ₂ (keV)	A ₁ (coups)	A ₂ (coups)	R'	R' _{min}	R' _{max}	α	α_{min}	α_{max}
^{84}Br	^{105}Ru	1897,6	676,4	1735 ± 152	6964 ± 485	1,59	1,03	2,37	1,24	0,70	1,88
		2484,1	676,4	567 ± 75	6964 ± 485	1,26	0,76	1,97	0,92	0,43	1,56
		3927,5	676,4	451 ± 62	6964 ± 485	1,27	0,72	2,12	0,94	0,39	1,68
^{105}Ru	^{128}Sn	469,4	482,3	4065 ± 1026	5258 ± 629	1,14	0,77	1,51	1,21	0,85	1,84
^{87}Kr	^{105}Ru	402,6	469,4	16953 ± 680	4065 ± 1026	2,67	1,84	3,56	1,14	0,69	1,58
		2558,1	469,4	1276 ± 92	4065 ± 1026	3,09	1,54	5,66	1,35	0,53	2,47
		2011,9	676,4	1916 ± 126	6964 ± 485	3,03	2,05	4,35	1,32	0,81	1,93

Les valeurs d'enrichissement obtenues sont élevées, comme attendu, et la moyenne de l'enrichissement trouvé sur les 7 ratios reportés ici est $\alpha = 1,16$ pour une valeur vraie supérieure à 0,90. Parmi les ratios sélectionnés et reportés dans le Tableau 4.8, il subsiste une incertitude importante concernant l'estimation des aires nettes des pics à 469,4 keV et 676,4 keV avec le logiciel Genie2000. Par exemple, la raie à 469,4 keV du ^{105}Ru possède une énergie relativement basse et donc un fond Compton très important. De plus, elle est située à proximité de l'intense raie à 475,5 keV du ^{77}Ge , un produit d'activation créé dans le cristal de germanium du détecteur, ce qui rend d'autant plus difficile l'estimation de sa surface nette. La Figure 4.8 illustre la variabilité de l'estimation de la surface nette par l'outil « *Interactive Peak Fit* » de Genie2000 vis-à-vis des limites de la région d'intérêt définie par l'utilisateur. À titre d'exemple, en utilisant une aire nette de 2149 ± 587 coups (voir Figure 4.8) et en fixant l'épaisseur de béton traversée à 7 cm, la valeur de α calculée pour le ratio 469,4 keV/482,3 keV du couple $^{105}\text{Ru}/^{128}\text{Sn}$ est 2,32 ($\alpha_{min} = 1,76$ et $\alpha_{max} = 3,25$) contre $\alpha = 1,21$ estimé avec une aire nette de 4065 ± 1026 (voir Tableau 4.8). La problématique est identique avec la raie à 676,4 keV, située dans une zone au fond Compton élevé et où de nombreux pics sont présents. Globalement, l'estimation de son aire nette s'étend de 4519 ± 1377 coups à 7145 ± 1228 coups en fonction de la région d'intérêt définie par l'utilisateur (voir Figure 4.9). Ces valeurs mènent respectivement à des valeurs d'enrichissement de 1,94 et 1,20 pour le ratio 1897,6 keV/676,4 keV du couple $^{84}\text{Br}/^{105}\text{Ru}$. Par ailleurs, l'incertitude sur la surface de pic annoncée par Genie2000 ne semble pas représentative de la réalité étant donné que les enveloppes des valeurs extrêmes des aires nettes ne se recouvrent pas. Il est donc impossible, compte tenu de la précision sur l'estimation des aires nettes, de donner un résultat fiable sur l'enrichissement dans ce cas de figure. On peut donc conclure qu'il est difficile, dans nos conditions de mesure, de différencier précisément l' ^{235}U de l' ^{238}U pour un échantillon d'UHE d'environ 10 g situé derrière 7,2 cm de béton après 45 min de refroidissement, mais la gamme d'enrichissement obtenue (autour de $\alpha = 1$) est nettement distincte du cas de l'échantillon d'UA (autour de $\alpha = 0$). À ce stade, la méthode permet donc quand même une classification entre uranium appauvri, naturel ou faiblement enrichi, et celui fortement enrichi.

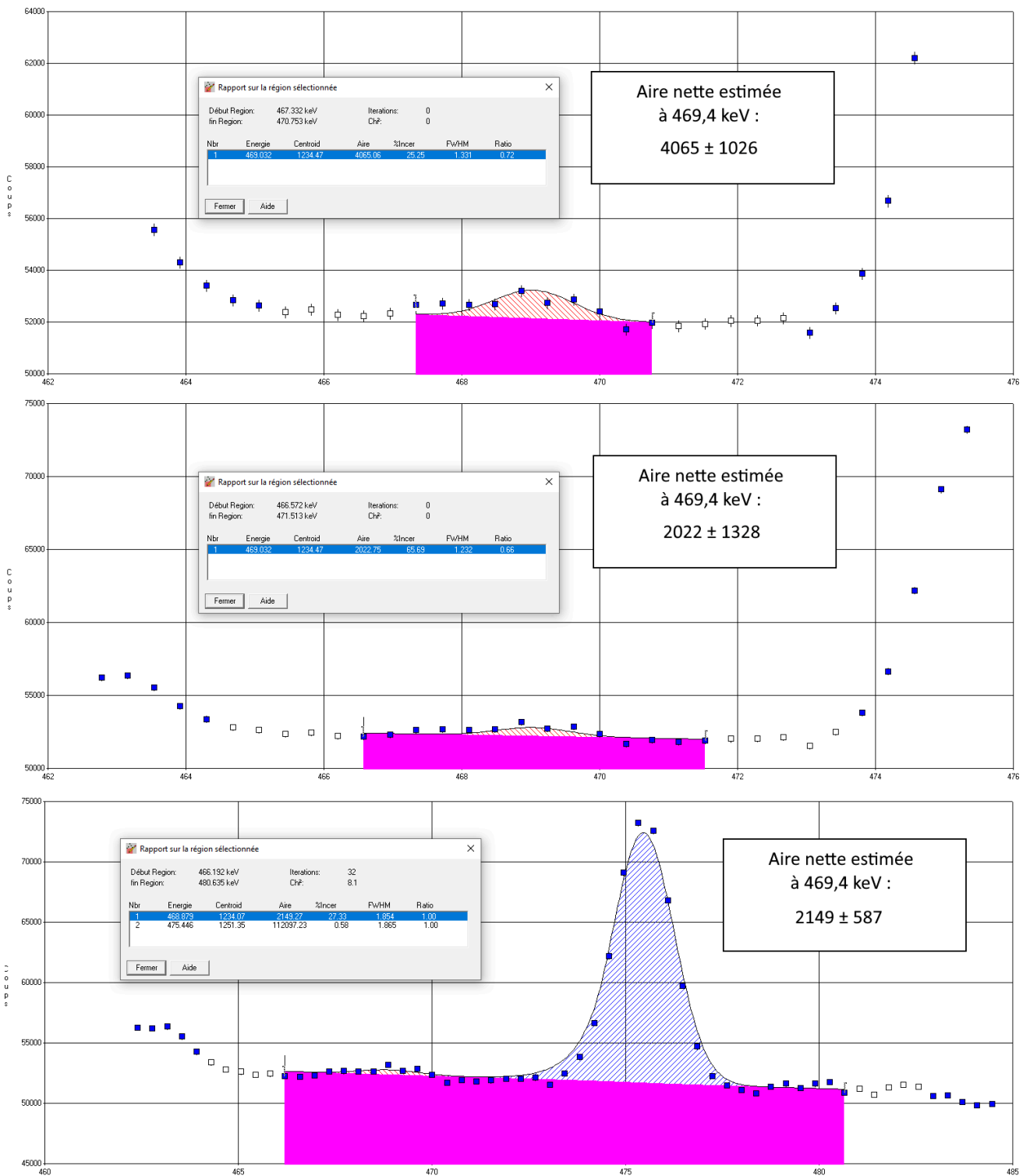


FIGURE 4.8 – Variations dans l'estimation de l'aire nette de la raie à 469,4 keV du ^{105}Ru .

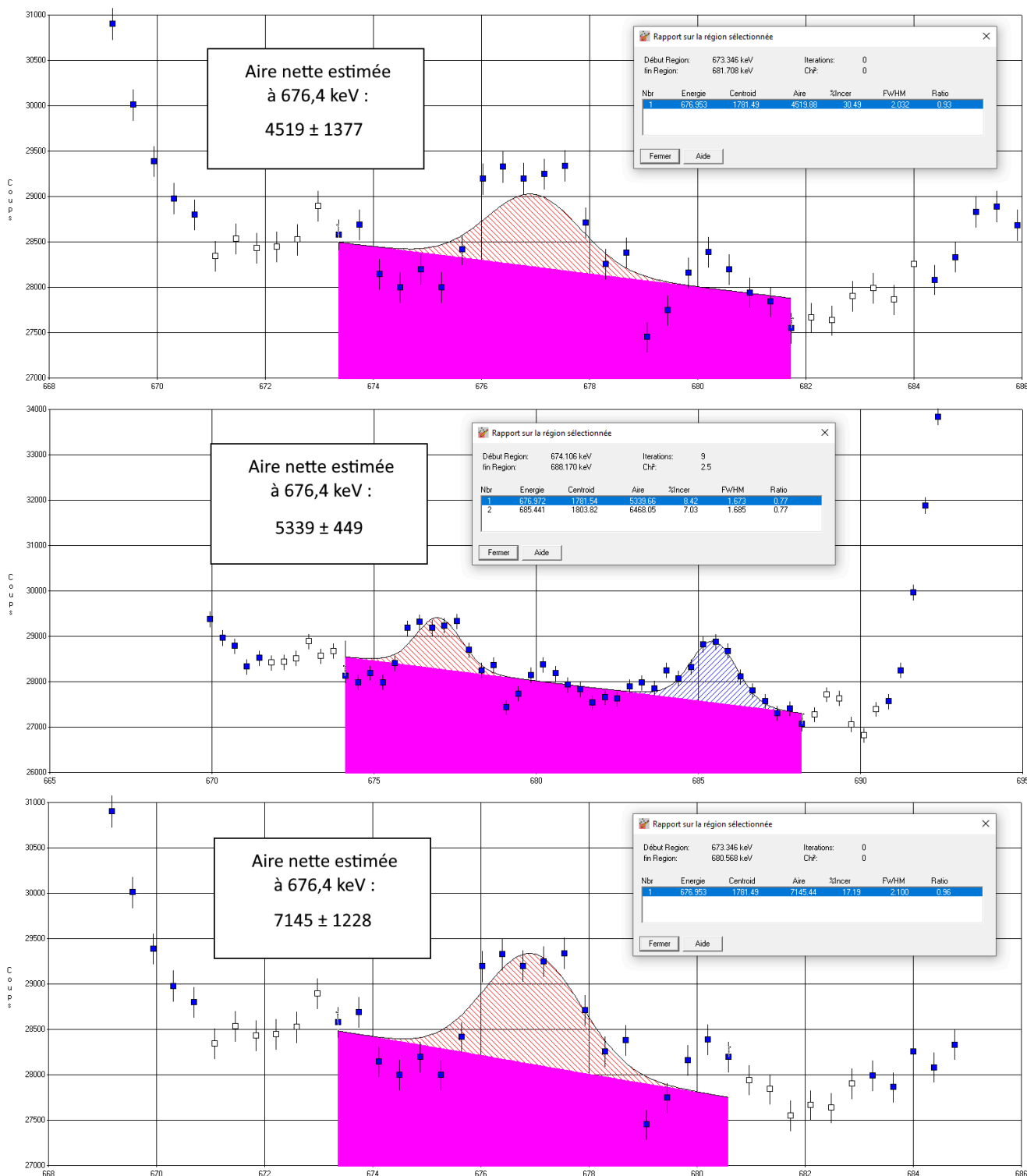


FIGURE 4.9 – Variations dans l'estimation de l'aire nette de la raie à 676,4 keV du ^{105}Ru .

4.3.2.4 Plutonium

Les spectres de rayonnements gamma retardés obtenus avec l'échantillon de plutonium placé dans le même insert périphérique que tous les échantillons d'uranium étudiés à travers cette Section 4.3.2 n'ont pas pu être exploités pour appliquer la technique de différenciation. Malgré un temps de refroidissement très court de 35 s et un temps de mesure conséquent de 22,1 h, la faible masse de l'échantillon ($\approx 1\text{ g}$, voir le Tableau 3.2 du Chapitre 3) ne permet pas d'obtenir une statistique de comptage suffisante. À titre d'exemple, la raie la plus intense parmi celles émises par les produits de photofission, celle à 1383,9 keV du ^{92}Sr , est montrée en Figure 4.10. Elle est située à côté de la raie à 1377,6 keV émise par le produit d'activation ^{57}Ni . Cette raie du ^{92}Sr est la seule émise par les produits de photofission

faisant partie des couples utiles dans la différenciation $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ qui est visible dans les spectres. Les raies du ^{105}Ru , qui fait partie de tous les couples de produits de photofission identifiés pour la différenciation, ne sont pas visibles.

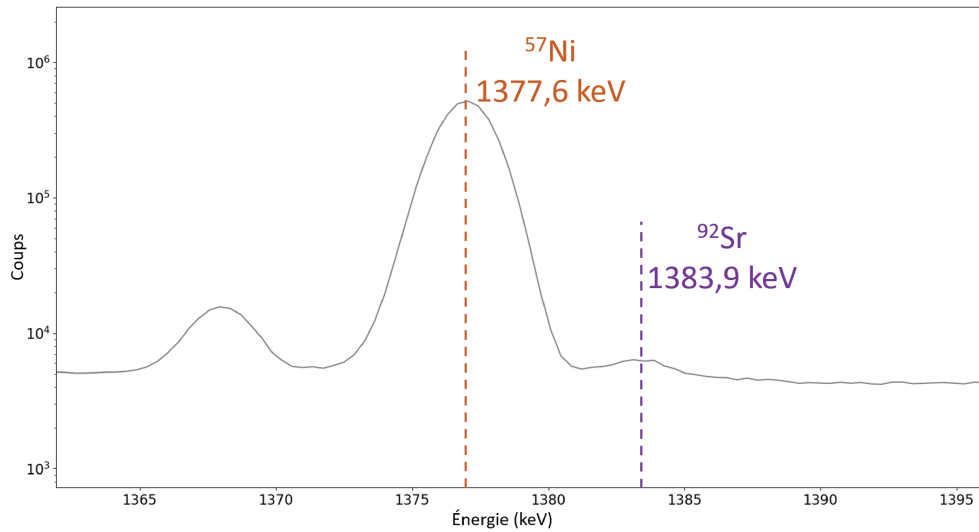


FIGURE 4.10 – Comparaison de la raie la plus intense du spectre émise par un produit de photofission (1383,9 keV du ^{92}Sr) avec la raie du ^{57}Ni produit par activation du ^{58}Ni pour 2 h d’irradiation, 35 s de refroidissement et 22,1 h de comptage.

4.3.3 Impact de la géométrie des actinides sur leur quantification

La localisation et la différenciation des actinides sont des étapes indispensables en vue d’une quantification des actinides. Nous avons vu dans les sections précédentes qu’elles nécessitent une bonne statistique de comptage pour les rayonnements gamma d’intérêt. Dans le cas contraire, les résultats fournis présentent de larges incertitudes qui, une fois combinées, peuvent amener à estimer la masse de matière nucléaire avec un intervalle de confiance très large. Mais la localisation et la différenciation des actinides ne sont pas les seules sources d’incertitude sur la quantification de la matière nucléaire, notamment à forte masse où on note également une incidence importante de la géométrie de cette matière via les effets d’auto-atténuation. Pour mettre ces effets en évidence, une étude par simulation basée sur la géométrie de l’échantillon d’UA (voir le Tableau 3.2 du Chapitre 3) a été effectuée. Cet échantillon ne contenant que 0,3 % d’ ^{235}U , nous avons considéré dans l’étude qu’il était exclusivement composé d’ ^{238}U . Les spectres de l’UA dans la matrice enregistrés pour le test de la localisation en position 2 (voir la Figure 4.3) pendant 1,3 h et après 44,9 min de refroidissement (*cf.* Tableau 4.2) sont réutilisés. Pour rappel, l’échantillon d’UA est situé derrière 7,2 cm de béton et 4 mm d’acier et irradié pendant 2 h à 200 Hz par le LINAC. Le but est de partir de l’aire nette de pics de rayonnements gamma retardés et de remonter à la masse d’ ^{238}U dans la matrice. Les rayonnements gamma étudiés ainsi que leur produit de fission émetteur sont reportés dans le Tableau 4.9. On y retrouve la raie à 1383,9 keV émise par le ^{92}Sr , la plus intense du spectre, ainsi que d’autres raies émises par des produits de photofission multi-émetteurs comme le ^{84}Br , l’ ^{135}I et le ^{142}La . Les surfaces nettes de pics sont estimées avec le logiciel Genie2000. Les périodes radioactives des produits de photofission sont issues de la base de données JEFF-3.3 [106] sauf celle du ^{92}Sr reprise des travaux de Leconte *et al.* [117]. Les énergies et les intensités d’émission et incertitudes associées sont également issues de la base de données JEFF-3.3 [106].

TABLEAU 4.9 – Caractéristiques des rayonnements gamma retardés étudiés pour la quantification ainsi que de leur produit de photofission émetteur.

Produit de photofission	T _{1/2}	Y _{c,8} (%)	E (keV)	I (%)	Surface nette (coups)
⁸⁴ Br	31,8 min	1,01 ± 0,16	1897,6	14,56 ± 1,98	1969 ± 144
			3927,5	6,78 ± 0,87	981 ± 73
			2484,1	6,66 ± 0,83	1192 ± 112
			3235,3	2,04 ± 0,37	243 ± 75
⁹² Sr	2,6 h	4,09 ± 0,66	1383,9	93,0 ± 0,5	123948 ± 607
¹³⁵ I	6,6 h	5,75 ± 0,95	1260,4	28,70 ± 0,92	31220 ± 475
			1131,5	22,59 ± 0,72	26289 ± 726
			1678,0	9,56 ± 0,36	12281 ± 542
			1457,6	8,67 ± 0,28	11786 ± 698
			1791,2	7,72 ± 0,24	8285 ± 135
			1706,5	4,10 ± 0,17	5331 ± 382
¹⁴² La	1,5 h	4,74 ± 0,79	641,3	47,40 ± 0,50	65792 ± 414
			2397,8	13,27 ± 0,32	19975 ± 140
			2542,7	10,00 ± 0,26	12652 ± 296
			894,9	8,34 ± 0,17	14452 ± 1023
			1901,3	7,16 ± 0,16	11280 ± 152
			2187,2	3,70 ± 0,10	7352 ± 253
			2971,0	3,13 ± 0,15	4212 ± 166
			1545,8	2,99 ± 0,15	4365 ± 145

La masse d'²³⁸U est estimée à partir de l'aire nette des pics par l'équation (4.5).

$$m(^{238}\text{U}) = \frac{1}{\tau} \times \frac{1}{Y_{c,8}^j} \times \frac{\lambda_j}{(1 - e^{-\lambda_j t_{irr}})e^{-\lambda_j t_{refr}}(1 - e^{-\lambda_j t_{mes}})} \times \frac{A(E_i)}{I(E_i)\varepsilon(E_i)} \quad (4.5)$$

Avec :

- τ le taux de photofission en $\text{s}^{-1} \cdot \text{g}^{-1}$, estimé par simulation MCNP, avec la connaissance de la profondeur de l'échantillon,
- $Y_{c,8}^j$ le rendement de photofission cumulatif du produit de photofission j ,
- λ_j la constante radioactive du produit de photofission j donnée en s^{-1} ,
- $A(E_i)$ l'aire nette de la raie d'énergie E_i émise par le produit de photofission j ,
- $I(E_i)$ l'intensité d'émission de la raie d'énergie E_i ,
- $\varepsilon(E_i)$ l'efficacité de détection des photons d'énergie E_i , prenant en compte l'efficacité géométrique, l'efficacité intrinsèque du détecteur Ge HP, l'atténuation au sein de l'échantillon (auto-absorption) et l'atténuation par le béton et l'acier composant la matrice. Elle représente le nombre de photons détectés par photon émis au sein de l'échantillon et est simulée avec MCNP,
- t_{irr} , t_{refr} et t_{mes} respectivement les durées d'irradiation, de refroidissement et de comptage, exprimées en s.

Pour mettre en évidence l'impact des effets d'auto-atténuation, à savoir l'autoprotection (vis-à-vis du flux photonique interrogateur) et l'auto-absorption (des rayonnements gamma retardés), plusieurs géométries d'échantillons ont été simulées. Les différences de configuration auront un impact sur le taux de photofission et sur l'efficacité de détection (voir équation (4.5)) qui sont tous deux simulés avec MCNP. Trois configurations ont été étudiées avec des cellules d'²³⁸U de masse volumique égale à $18,96 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ (uranium métallique). La configuration 1 correspond à des effets d'auto-atténuation faibles dans la cellule d'²³⁸U simulée avec une fine épaisseur de 1 mm. La configuration 2 est la configuration expérimentale de référence. Elle reprend la géométrie de l'échantillon d'UA, soit 1 cm d'épaisseur. L'efficacité de détection est calculée en simulant les rayonnements gamma retardés dans l'échantillon avec la même distribution en profondeur que les photofissions, comme expliqué dans la Section 3.2.1.1 du Chapitre 3. Enfin, la configuration 3 vise à maximiser les effets d'auto-atténuation

en simulant une sphère d' ^{238}U de la même masse que l'échantillon d'UA, soit plus de 200 g, et par suite une sphère de diamètre supérieur à 2 cm. Elle est donc le siège d'importants effets d'autoprotection et d'auto-absorption illustrés sur la Figure 4.11 qui représente l'évolution du taux de photofission en fonction de la profondeur de la sphère et les zones d'émission des rayonnements gamma retardés qui parviennent à en sortir et à atteindre le détecteur Ge HP (à deux énergies extrêmes, 641 keV et 3927 keV).

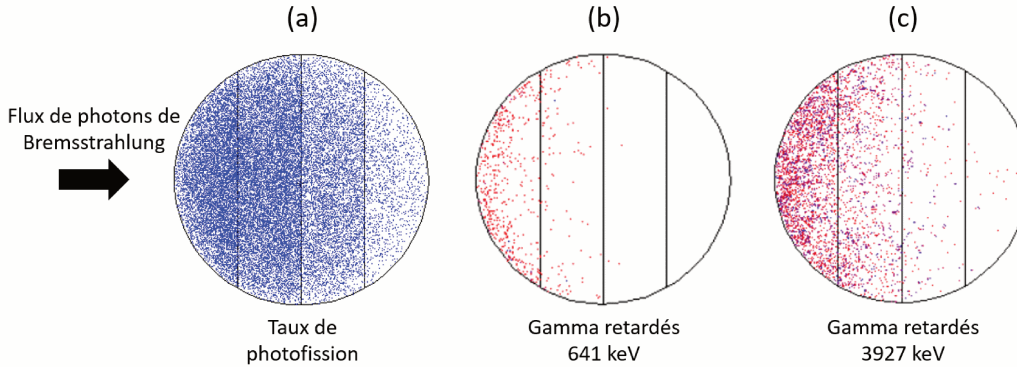


FIGURE 4.11 – Distribution en profondeur (a) du taux de photofission et des rayonnements gamma retardés parvenant à sortir de la sphère et atteignant le détecteur aux énergies de (b) 641 keV et (c) 3927 keV dans la configuration 3.

Les résultats de simulation du taux de photofission dans les trois configurations sont donnés dans le Tableau 4.10. Le taux de photofission est quasiment divisé par un facteur 2 entre le cas où l'auto-atténuation est limitée (configuration 1) et le cas où elle est maximisée (configuration 3).

TABLEAU 4.10 – Taux de photofission (en $\text{s}^{-1}.\text{g}^{-1}$) simulé avec MCNP dans les différentes configurations.

	Configuration 1 <i>Auto-atténuation limitée</i>	Configuration 2 <i>Auto-atténuation réaliste</i>	Configuration 3 <i>Auto-atténuation maximisée</i>
Taux de photofission τ ($\text{s}^{-1}.\text{g}^{-1}$)	$(4,30 \pm 0,63) \times 10^5$	$(3,37 \pm 0,49) \times 10^5$	$(2,18 \pm 0,32) \times 10^5$

Les efficacités de détection correspondantes, en fonction de l'énergie du rayonnement gamma, sont listées dans le Tableau 4.11. L'écart des efficacités de détection par rapport à la configuration 2 dans les configurations 1 et 3 est tracé sur la Figure 4.12. Les efficacités simulées dans la configuration 1, où l'auto-atténuation est limitée, possèdent plus d'écart avec la configuration 2 réaliste que celles de la configuration 3 où l'auto-atténuation est maximisée. En effet, l'échantillon réel de la configuration 2 a une épaisseur conséquente de 1 cm, pour laquelle les effets d'auto-atténuation sont déjà prégnants. Ainsi, pour des rayonnements gamma d'énergie inférieure à 1 MeV, l'écart d'efficacité de détection vis-à-vis de la configuration 2 ne dépasse pas les 40 % dans la configuration 3 mais il atteint 105 % pour des rayonnements gamma de 641,3 keV dans le cas de la configuration 1. Ces écarts élevés pour les rayonnements gamma de basse énergie montrent qu'il est peu prudent d'utiliser des raies de moins de 1 MeV pour la quantification, mais par contre elles peuvent permettre de mettre en évidence des phénomènes d'auto-atténuation en comparant l'activité des produits de photofission multi-émetteurs gamma estimée avec leurs différentes raies. Ce phénomène d'atténuation différentielle étant aussi utilisé pour la localisation de la matière nucléaire (avec les raies à 1435,9 keV et 2639,6 keV du ^{138}Cs , voir Section 4.2), notamment sa profondeur dans le béton, il conviendra aussi d'étudier l'influence de l'auto-atténuation sur la localisation. *A priori*, avec la méthode proposée basée sur la distorsion du ratio des raies dans deux positions angulaires de mesure, l'effet de l'auto-atténuation dans la matière nucléaire ne devrait pas être significatif. Cependant, pour l'alternative consistant à repérer les points chauds pendant l'irradiation (se référer au Chapitre 5) afin de focaliser la mesure Ge HP dessus (une seule position angulaire de mesure), il devra être pris en compte dans l'incertitude de localisation de la profondeur de la matière nucléaire.

TABLEAU 4.11 – Efficacités de détection simulées avec MCNP dans les différentes configurations.

Énergie (keV)	Configuration 1 <i>Auto-atténuation limitée</i>	Configuration 2 <i>Auto-atténuation réaliste</i>	Configuration 3 <i>Auto-atténuation maximisée</i>
641,3	$4,27 \times 10^5$	$2,08 \times 10^5$	$1,30 \times 10^5$
894,9	$4,51 \times 10^5$	$2,63 \times 10^5$	$1,76 \times 10^5$
1131,5	$4,42 \times 10^5$	$2,89 \times 10^5$	$2,01 \times 10^5$
1260,4	$4,35 \times 10^5$	$2,93 \times 10^5$	$2,11 \times 10^5$
1383,9	$4,29 \times 10^5$	$3,00 \times 10^5$	$2,15 \times 10^5$
1457,6	$4,27 \times 10^5$	$2,99 \times 10^5$	$2,19 \times 10^5$
1545,8	$4,24 \times 10^5$	$2,97 \times 10^5$	$2,15 \times 10^5$
1678,0	$4,18 \times 10^5$	$2,90 \times 10^5$	$2,18 \times 10^5$
1706,5	$4,16 \times 10^5$	$2,90 \times 10^5$	$2,19 \times 10^5$
1791,2	$4,07 \times 10^5$	$2,91 \times 10^5$	$2,20 \times 10^5$
1897,6	$3,97 \times 10^5$	$2,82 \times 10^5$	$2,21 \times 10^5$
1901,3	$3,98 \times 10^5$	$2,82 \times 10^5$	$2,21 \times 10^5$
2187,2	$3,81 \times 10^5$	$2,74 \times 10^5$	$2,16 \times 10^5$
2397,8	$3,73 \times 10^5$	$2,65 \times 10^5$	$2,11 \times 10^5$
2484,1	$3,66 \times 10^5$	$2,61 \times 10^5$	$2,08 \times 10^5$
2542,7	$3,60 \times 10^5$	$2,59 \times 10^5$	$2,06 \times 10^5$
2971,0	$3,42 \times 10^5$	$2,47 \times 10^5$	$1,95 \times 10^5$
3235,3	$3,14 \times 10^5$	$2,41 \times 10^5$	$1,82 \times 10^5$
3927,5	$2,86 \times 10^5$	$2,10 \times 10^5$	$1,58 \times 10^5$

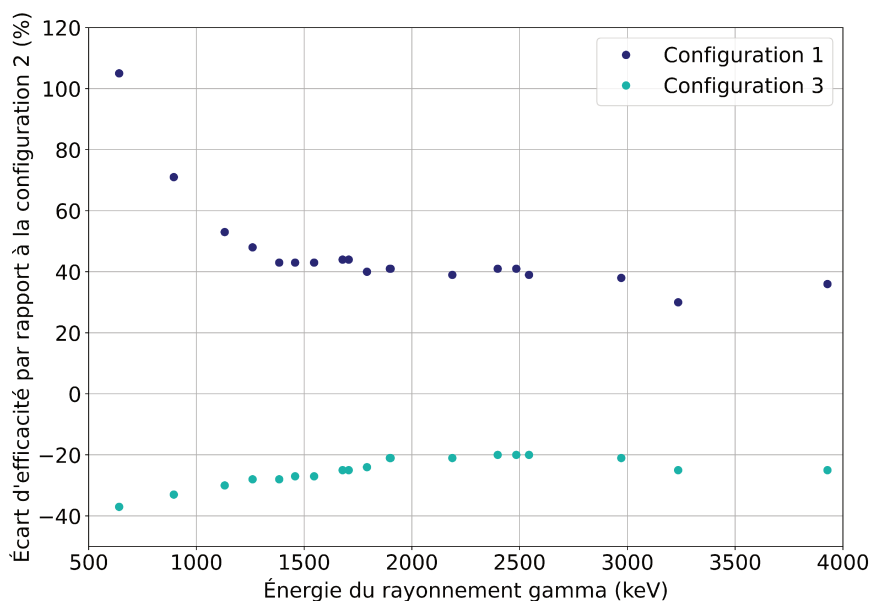


FIGURE 4.12 – Écart de l'efficacité de détection par rapport à la configuration 2 en fonction de l'énergie du rayonnement gamma.

Les masses d' ^{238}U estimées pour chaque rayonnement gamma retardé dans les trois configurations sont listées dans le Tableau 4.12. Ces données sont également tracées sur la Figure 4.13. L'incertitude relative sur la masse d' ^{238}U évaluée est calculée comme la combinaison quadratique des sources d'incertitude suivantes :

- l'incertitude sur l'intensité d'émission des rayonnements gamma retardés (voir Tableau 4.9),
- l'incertitude sur l'aire nette des raies (voir Tableau 4.9),
- l'incertitude sur le taux de photofission (voir Tableau 4.10),

- l'incertitude sur le taux de production cumulatif du produit de photofission émetteur (voir Tableau 4.9),
- une incertitude relative de 7 % sur l'efficacité de détection, elle-même combinaison quadratique d'une incertitude relative de 5 % sur l'efficacité de détection intrinsèque et d'une incertitude relative de 5 % sur l'efficacité de détection géométrique et l'atténuation par la matrice.

Il existe une forte disparité de la masse estimée en fonction des raies. Par exemple, dans la configuration 2, l'estimation la plus basse de $181,2 \pm 49,7$ g se fait avec la raie à 1897,6 keV du ^{84}Br dont la surface nette est estimée à 1969 ± 144 coups. Or, cette raie rentre en interférence avec la raie à 1901,3 keV du ^{142}La beaucoup plus intense, avec 11280 ± 152 coups, rendant difficile l'estimation précise de son aire nette. Cette raie fournit également l'évaluation de masse la plus basse dans les configurations 1 et 3. La même problématique se présente avec la raie à 1457,6 keV de ^{135}I qui estime la masse la plus élevée de $309,4 \pm 74,9$ g. L'extraction de l'aire nette est compromise étant donné l'interférence avec une raie à 1454,9 keV du ^{77}Ge issu de l'activation neutronique du détecteur Ge HP.

La configuration 2, pour laquelle l'auto-atténuation est réaliste par rapport à l'expérience, permet d'évaluer une masse moyenne de 253,0 g d' ^{238}U à 7,2 cm de profondeur dans la matrice en prenant en compte les 19 rayonnements gamma retardés analysés. On distingue sur la Figure 4.13 que la configuration 1 sous-estime la masse alors que la configuration 3 la surestime. Le Tableau 4.12 permet de calculer une estimation moyenne de la masse d' ^{238}U de 136,1 g pour la configuration 1 contre 528,0 g pour la configuration 3. Selon que l'on minimise ou maximise les effets d'auto-atténuation, il existe donc quasiment un facteur 4 sur l'estimation de la masse.

TABLEAU 4.12 – Masse d' ^{238}U estimée pour chaque rayonnement gamma retardé dans les trois configurations étudiées.

Énergie (keV)	Configuration 1 <i>Auto-atténuation limitée</i>	Configuration 2 <i>Auto-atténuation réaliste</i>	Configuration 3 <i>Auto-atténuation maximisée</i>
641,3	$107,2 \pm 24,9$	$280,8 \pm 65,3$	$694,3 \pm 161,4$
894,9	$126,9 \pm 30,9$	$277,4 \pm 67,5$	$641,9 \pm 156,3$
1131,5	$140,5 \pm 33,0$	$274,3 \pm 64,4$	$609,4 \pm 143,2$
1260,4	$133,5 \pm 31,2$	$252,8 \pm 59,1$	$544,4 \pm 127,3$
1383,9	$133,3 \pm 30,4$	$243,6 \pm 55,7$	$526,6 \pm 120,3$
1457,6	$170,1 \pm 40,9$	$309,4 \pm 74,9$	$654,2 \pm 157,4$
1545,8	$113,8 \pm 27,3$	$207,6 \pm 49,7$	$443,1 \pm 106,1$
1678,0	$164,0 \pm 39,1$	$302,0 \pm 72,0$	$622,4 \pm 148,3$
1706,5	$166,5 \pm 40,9$	$304,9 \pm 74,9$	$625,2 \pm 153,5$
1791,2	$140,7 \pm 32,9$	$251,2 \pm 58,7$	$513,9 \pm 120,1$
1897,6	$100,8 \pm 27,6$	$181,2 \pm 49,7$	$357,1 \pm 97,9$
1901,3	$130,6 \pm 30,5$	$235,8 \pm 55,1$	$464,2 \pm 108,4$
2187,2	$172,4 \pm 40,7$	$306,0 \pm 72,3$	$600,9 \pm 142,0$
2397,8	$133,0 \pm 31,1$	$239,4 \pm 55,9$	$465,1 \pm 108,6$
2484,1	$144,7 \pm 39,8$	$259,6 \pm 71,4$	$502,1 \pm 138,0$
2542,7	$115,9 \pm 27,2$	$205,5 \pm 48,2$	$399,7 \pm 93,8$
2971,0	$130,1 \pm 31,2$	$229,2 \pm 55,0$	$450,5 \pm 108,1$
3235,3	$112,4 \pm 47,5$	$186,6 \pm 78,9$	$383,0 \pm 161,9$
3927,5	$150,0 \pm 40,6$	$260,3 \pm 70,4$	$534,0 \pm 144,4$
Valeur moyenne de la masse (g)	136,1	253,0	528,0

Dans les cas où l'auto-atténuation est limitée ou réaliste, donc prise en compte pour ce dernier, on remarque sur la Figure 4.13 un alignement global de la masse estimée quelle que soit l'énergie du rayonnement gamma considéré. Ce n'est pas le cas dans la configuration 3 où l'auto-atténuation est maximisée.

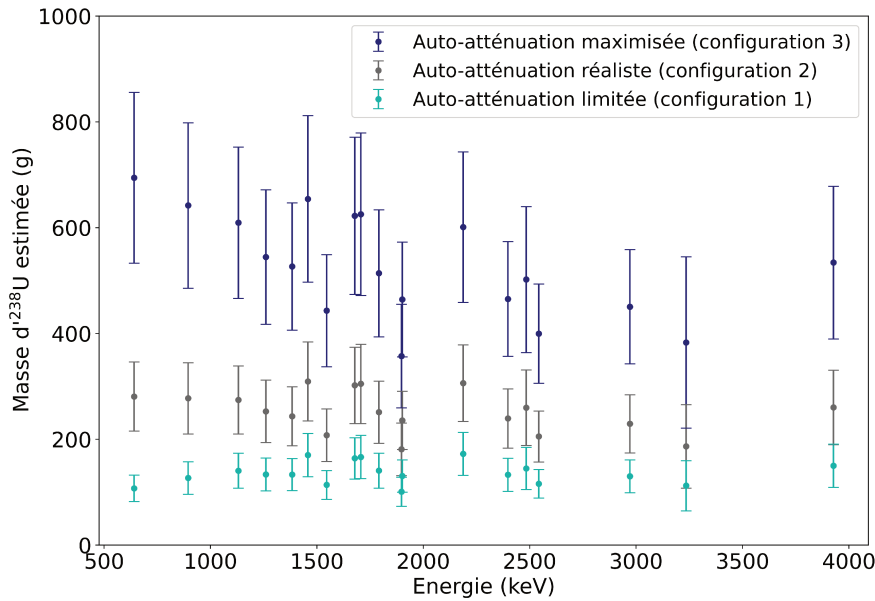


FIGURE 4.13 – Masse d' ^{238}U estimée en fonction de l'énergie du rayonnement gamma retardé étudié pour les trois configurations.

Ces études mettent en évidence le fait que la forme géométrique sous laquelle est considérée la matière nucléaire a une incidence directe sur l'estimation de sa masse. Cependant, il est important de rappeler qu'un cas peu probable est étudié à travers ces simulations. En effet, il est peu envisageable qu'une masse de plus de 200 g concentrée en un point chaud soit trouvée dans un colis de déchets. Qui plus est, l'imagerie à haute énergie donnerait déjà des informations sur cette masse de matière nucléaire dans le cas où elle serait très dense et peu étendue. Les effets d'auto-atténuation sont moindres dans le cas d'une masse d'actinides plus faible. À titre d'exemple, une comparaison est effectuée entre la masse d' ^{238}U d'environ 200 g utilisée lors des essais et une masse de 10 g à la même position dans la matrice en béton. Les configurations 1 et 3, *i.e.* une plaque de 1 mm d'épaisseur et une sphère, sont reprises pour la masse de 10 g. Pour la masse voisine de 200 g, il existe un facteur 6,5 entre son estimation dans les configurations 1 et 3 pour des rayonnements gamma retardés de 641,3 keV mais ce facteur est réduit à 2,5 pour la masse de 10 g. À une énergie de 3927 keV, les effets d'auto-atténuation sont moindres mais restent significatifs, ces deux facteurs d'écart entre les configurations géométriques extrêmes valant encore 3,6 et 1,7, respectivement pour 200 g et 10 g.

TABLEAU 4.13 – Comparaison des effets d'auto-atténuation pour une masse d' ^{238}U voisine de 200 g (échantillon d'UA réel, valeur précise non communicable) ou égale à 10 g (échantillon fictif modélisé).

	Masse d'environ 200 g			Masse de 10 g		
	Config. 1	Config. 3	$\frac{\text{masse config 3}}{\text{masse config 1}}$	Config. 1	Config. 3	$\frac{\text{masse config 3}}{\text{masse config 1}}$
τ ($\text{s}^{-1} \cdot \text{g}^{-1}$)	$4,30 \times 10^5$	$2,18 \times 10^5$		$5,18 \times 10^5$	$3,76 \times 10^5$	
ε (641,3 keV)	$4,27 \times 10^{-5}$	$1,30 \times 10^{-5}$	641,3 keV : 6,5	$4,17 \times 10^{-5}$	$2,34 \times 10^{-5}$	641,3 keV : 2,5
ε (3927,5 keV)	$2,86 \times 10^{-5}$	$1,58 \times 10^{-5}$	3927,5 keV : 3,6	$2,75 \times 10^{-5}$	$2,19 \times 10^{-5}$	3927,5 keV : 1,7

Sous-estimer la masse de matière nucléaire étant inacceptable du point de vue de la sûreté, on peut envisager d'utiliser systématiquement une hypothèse d'auto-atténuation maximale (sphère) et une approche itérative pour ajuster le rayon de la sphère après une première estimation de la masse de matière. Néanmoins, une approche trop conservatrice pourrait conduire à dépasser le seuil de criticité (par exemple 200 g de matière fissile), donc il sera intéressant d'étudier les possibilités d'exploiter les différences d'auto-atténuation de raies. On peut signaler des approches récentes consistant à exprimer de façon analytique l'auto-absorption (en spectrométrie gamma passive) en fonction du rayon d'un échantillon de plutonium afin de déduire de la mesure des différentes raies du ^{239}Pu le rayon le

plus vraisemblable, avec un formalisme Bayésien [122]. Dans cette même étude, plusieurs détecteurs Ge HP situés autour d'un fût de déchets radioactifs permettent également d'obtenir une information sur la localisation la plus vraisemblable des actinides dans une tranche du colis (avec un blindage uniquement vertical, pour ne viser qu'une tranche, mais sans collimation angulaire). Ces approches pourraient s'avérer d'un grand intérêt pour la photofission car le cadre Bayésien permet d'appréhender de façon globale les différents phénomènes (ici l'atténuation dans le béton et l'auto-atténuation dans la matière nucléaire, mais aussi tous les paramètres d'influence, données issues d'autres mesures, comme l'imagerie photonique à haute énergie, et les jugements d'experts) en recherchant les distributions des informations d'intérêt (comme la localisation, masse et géométrie des matières nucléaires) permettant la meilleure adéquation avec les différentes données disponibles (mesurées ou *a priori*).

4.4 Conclusion du chapitre

Au cours de ce chapitre, une méthode de localisation des actinides dans une matrice en béton couplant des résultats expérimentaux et des études par simulation a été présentée. Elle consiste à étudier l'atténuation différentielle des rayonnements gamma retardés de photofission à 1435,9 keV et 2639,6 keV émis par le ^{138}Cs . Pour ce faire, des expériences avec les échantillons d'UA et d'UHE placés derrière 7,2 cm de béton dans la matrice sont effectuées. Le ratio mesuré de ces deux raies est étudié dans deux positions de la matrice et comparé à une carte de distorsion obtenue via des simulations MCNP pour obtenir un couple (r, θ) pour la localisation, r étant le rayon et θ l'angle auquel se situe l'échantillon. Finalement, un résultat de localisation des actinides est obtenu pour chaque échantillon. Pour l'UA, la position obtenue est $(42 \pm 1,5)$ cm, $(47 \pm 10)^\circ$, pour l'UHE, le résultat est (43 ± 3) cm, $(33 \pm 17)^\circ$, comparé à la position réelle de 43 cm pour r et 45° pour θ . Les résultats sont encourageants mais montrent toutefois de moins bonnes performances de localisation dans le cas de l'échantillon d'UHE, de masse environ 20 fois plus faible que celui d'UA, ce qui met en évidence l'importance d'avoir une bonne statistique de comptage pour les raies à 1435,9 keV et 2639,6 keV du ^{138}Cs .

Cette problématique est également présente pour la différenciation des actinides au sein de la matrice. Des essais ont été effectués en reprenant les spectres enregistrés suite à l'interrogation photonique active sur les échantillons d'UA et d'UHE situés derrière 7,2 cm de béton dans la matrice. Lorsque la masse d'uranium est importante, en l'occurrence supérieure à 200 g dans certaines de nos expériences, l'application de la technique de différenciation permet de déterminer un enrichissement correct. Cependant, lorsqu'une masse d'environ 10 g d'UHE est située à une profondeur de 7,2 cm dans la matrice en béton, l'enrichissement en ^{235}U ne peut être précisément évalué à cause de la faible statistique de comptage et de la difficulté à estimer correctement les aires nettes des raies considérées, mais on peut néanmoins déterminer de manière qualitative la gamme d'enrichissement (appauvri ou faiblement enrichi à moins de 20 % contre fortement à très fortement enrichi au-delà). La méthode de différenciation entre l' ^{235}U et l' ^{238}U s'est montrée efficace sur des masses d'uranium de l'ordre de 200 g localisées à une faible profondeur dans la matrice. Des études complémentaires doivent être effectuées pour optimiser la méthode, notamment la sélection des couples de produits de photofission les plus adaptés à une mesure avec une forte atténuation des rayonnements gamma retardés, même s'ils montrent un pouvoir discriminant plus faible ou des caractéristiques temporelles moins favorables que les couples identifiés *a priori*.

Des études par simulation ont également permis de mettre en évidence l'impact de la géométrie de la matière nucléaire qui a une grande influence sur les effets d'auto-atténuation, d'une part l'autoprotection vis-à-vis du flux photonique interrogateur et d'autre part l'auto-absorption des rayonnements gamma retardés. En prenant comme référence la géométrie réelle de l'échantillon d'UA, deux autres géométries enveloppes ont été modélisées (une plaque fine et une sphère d'uranium métallique) montrant une différence d'auto-atténuation d'un facteur 4 entre ces deux cas extrêmes et par suite sur la masse d' ^{238}U évaluée. Pour éviter de fortes sous-estimation ou surestimation de la masse d'actinides, il sera donc primordial de chercher à évaluer le niveau d'auto-atténuation, par exemple en analysant les intensités relatives des différentes raies de certains produits de photofission multi-émetteurs gamma pour trouver un modèle géométrique réaliste de la matière nucléaire (ou un équivalent, comme par

exemple une sphère de rayon paramétrable). Ce type d'information sur l'atténuation différentielle des raies gamma d'un même émetteur étant également utile pour la localisation en profondeur de la matière, il serait aussi pertinent d'étudier l'apport des approches bayésiennes pour ajuster au mieux les distributions des informations recherchées (masse de matière nucléaire, position et géométrie) en fonction des informations disponibles (données mesurées de photofission ou d'autres techniques comme l'imagerie photonique, données *a priori* du producteur de déchets ou jugements d'experts).

Enfin, il est important de mentionner que les cas étudiés dans ce chapitre considèrent un seul amas de matière nucléaire à une altitude donnée du colis, considérée comme connue. En réalité, il est possible que plusieurs amas soient localisés à différents endroits de la matrice et en pratique, il faudra mettre en place une technique de localisation préalable basée sur un scanning complet du colis. Cela pourrait être réalisé avec des détecteurs à scintillation comme des NaI(Tl) ou des BGO, qui seraient capables de mesurer globalement (sans spectroscopie fine) le rayonnement gamma retardé de photofission le plus énergétique (pour s'affranchir du rayonnement gamma d'activation des matériaux non nucléaires) entre des trains d'impulsions du LINAC, comme abordé dans le Chapitre 5. De plus, dans certains colis de déchets de 870 L, il est possible que la contamination soit dispersée dans les déchets (par exemple de la poudre) plutôt que localisée comme étudié ici. Idéalement, le scan du colis pendant l'irradiation devrait aussi permettre de mettre en évidence la présence de matière répartie de façon homogène, mais sa faisabilité expérimentale reste à démontrer.

Chapitre 5

Performances de la photofission en termes de limites de détection

5.1 Introduction du chapitre

L'objectif de ce dernier chapitre est de réaliser une estimation des performances de détection et de présenter les limitations de la méthode de caractérisation par Interrogation Photonique Active (IPA). Dans un premier temps, les limites de détection sont calculées pour une matrice en béton utilisée lors d'expériences dans la cellule CINPHONIE. Une comparaison entre les résultats expérimentaux et ceux obtenus par simulation pour la matrice en béton nous permet dans un second temps d'évaluer les performances de la méthode de caractérisation par IPA sur un colis 870 L. Ce type de colis historique est difficile à caractériser étant donné son volume important, son enveloppe bétonnée et son contenu hétérogène. La mise au point d'une méthode de caractérisation non destructive applicable à cette famille de colis est nécessaire afin de les transporter, les entreposer et les stocker de façon sûre. Actuellement entreposés à l'INB 56 du CEA de Cadarache, ces colis 870 L doivent être déplacés vers l'installation d'entreposage CEDRA [37]. Un des critères d'acceptation dans cette installation est qu'ils doivent posséder au maximum 200 g de matière fissile, incertitudes comprises. Une première estimation des limites de détection atteignables via la caractérisation par IPA est donc effectuée afin de dégager les limitations actuelles et les principaux axes d'amélioration de la méthode.

5.2 Performances pour une matrice en béton

5.2.1 Présentation du dispositif expérimental

Les expériences utilisant la matrice en béton et effectuées pour la mise au point de la technique de localisation présentée dans le Chapitre 4 sont reprises pour l'estimation des limites de détection en ^{238}U et ^{235}U . Pour rappel, un échantillon d'uranium avait été placé dans un trou périphérique de la matrice en béton, comme indiqué sur la Figure 5.1. Les échantillons d'UA et d'UHE sont les mêmes que ceux utilisés lors de la campagne expérimentale de 2021 (se référer au Tableau 3.2 du Chapitre 3 pour leur description).

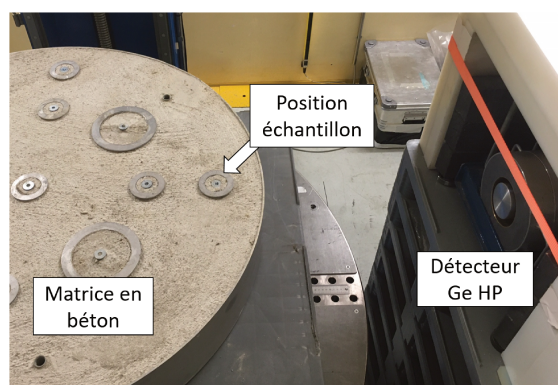


FIGURE 5.1 – Dispositif expérimental utilisé pour l'estimation des limites de détection en uranium dans une matrice en béton.

Une irradiation de 2 h avait été effectuée avec un faisceau de *Bremsstrahlung* de 17,5 MeV. Ensuite, une première phase de comptage de 45 min avec la matrice tournée de 45° avait eu lieu, suivie par une seconde phase de comptage de plusieurs heures où l'échantillon était situé en face du détecteur (voir la Figure 4.2 du Chapitre 4). Dans ce cadre, nous allons nous intéresser uniquement à la phase d'irradiation et à la seconde phase de comptage durant laquelle les échantillons d'uranium étaient situés en face du détecteur. Les configurations temporelles et géométriques sont rappelées dans le Tableau 5.1.

TABLEAU 5.1 – Configurations temporelles et géométriques pour le calcul des limites de détection dans la matrice en béton.

	UA	UHE
Durée d'irradiation	2 h	
Durée de refroidissement	44,9 min	43,6 min
Durée de comptage	1,3 h	20,4 h
Distance LINAC-échantillon	153,6 cm	
Distance détecteur-échantillon	63,8 cm	
Épaisseur de béton traversée	7,2 cm	

5.2.2 Estimation des limites de détection pour la matrice en béton

5.2.2.1 Présentation de la méthode

Les limites de détection dans la matrice en béton ont été estimées avec la raie à 1383,9 keV émise par le ^{92}Sr avec une intensité de 93 % [106], qui est la plus intense du spectre. Dans un premier temps, il convient de réaliser une estimation du nombre de rayonnements gamma retardés détectés par simulation. Ensuite, une comparaison entre les résultats de simulation et l'expérience est effectuée pour valider l'approche numérique. Enfin, une évaluation des limites de détection en fonction de la profondeur dans la matrice en béton peut être conduite.

5.2.2.2 Estimation du nombre de rayonnements gamma retardés détectés

La première étape nécessaire à l'évaluation des limites de détection est l'estimation du nombre de rayonnements gamma retardés de 1383,9 keV détectés. Ce dernier est donné par l'équation (5.1).

$$N_{det}(1383,9 \text{ keV}) = \frac{1}{\lambda} \times \tau_{photofission} \times I(1383,9 \text{ keV}) \times \varepsilon(1383,9 \text{ keV}) \times Y_c(^{92}\text{Sr}) \times (1 - e^{-\lambda t_{irr}}) e^{-\lambda t_{refr}} (1 - e^{-\lambda t_{mes}}) \quad (5.1)$$

Avec :

- $N_{det}(1383,9 \text{ keV})$ le nombre de rayonnements gamma de 1383,9 keV détectés,
- λ la constante radioactive de ^{92}Sr , égale à $7,42 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ [117], correspondant à une période d'environ 2,6 h,
- $\tau_{photofission}$ le taux de photofission dans l'échantillon d'uranium, en s^{-1} ,
- $I(1383,9 \text{ keV})$ l'intensité d'émission du gamma de 1383,9 keV, égale à 93 % [106],
- $\varepsilon(1383,9 \text{ keV})$ l'efficacité absolue de détection à 1383,9 keV,
- $Y_c(^{92}\text{Sr})$ le taux de production cumulé du ^{92}Sr pour l'actinide de l'uranium considéré, égal à $0,0409 \pm 0,0066$ pour l' ^{238}U et à $0,0517 \pm 0,0090$ pour l' ^{235}U dans nos mesures de 2021,
- t_{irr} , t_{refr} et t_{mes} les durées d'irradiation, de refroidissement et de comptage, en s.

Des simulations à l'aide du code de calcul MCNP 6.1 [104] sont effectuées, dans un premier temps pour estimer le taux de photofission dans les échantillons d'uranium et dans un second temps pour évaluer l'efficacité de détection des rayonnements gamma retardés de 1383,9 keV. Dans un souci de

simplification, on néglige la part de fissions neutroniques pour laquelle des études qualitatives seront abordées dans la Section 5.3.4 pour un colis 870 L. De même, pour le calcul du taux de photofission et du nombre de rayonnements gamma détectés, on considère que l'échantillon d'UA est composé à 100 % d' ^{238}U et que celui d'UHE est composé à 100 % d' ^{235}U . Les différentes étapes de calcul sont listées sur la Figure 5.2.

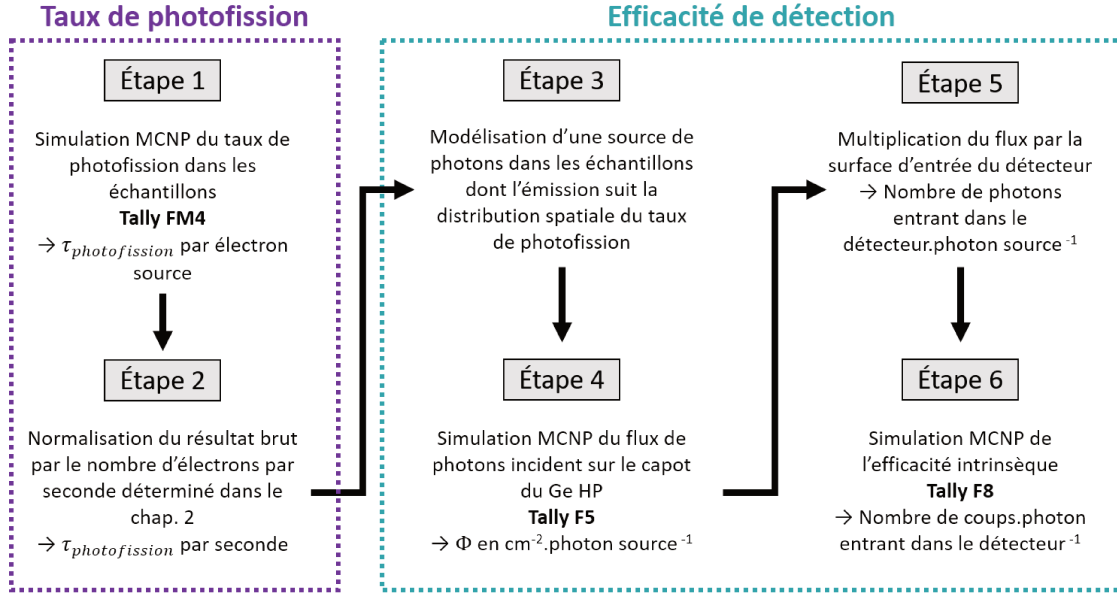


FIGURE 5.2 – Schéma de calcul permettant de déterminer le nombre de rayonnements gamma retardés détectés via le taux de photofission dans les échantillons et l'efficacité de détection des rayonnements gamma retardés.

Le taux de photofission est obtenu avec MCNP (Étape 1 de la Figure 5.2) en utilisant un estimateur du flux volumique (tally F4) dans le volume des échantillons modélisés, convolué par la section efficace de photofission à l'aide de l'option FM4 (pour *tally multiplier card*). Le résultat de la simulation est normalisé (Étape 2) avec le nombre d'électrons par seconde calculé dans le Chapitre 2 pour les expériences de 2021. L'efficacité de détection se calcule également par simulation MCNP, en deux temps, ce qui se traduit par la formule (5.2). Dans un premier temps, l'émission des photons source au sein de l'échantillon (Étape 3 de la Figure 5.2) suit la distribution spatiale du taux de photofission (voir la Section 3.2.1.1 du Chapitre 3) et on calcule l'efficacité géométrique combinée à l'atténuation des rayonnements gamma retardés dans l'échantillon et la matrice en béton (Étape 4) en utilisant un tally F5 (détecteur point donnant le flux de photons à l'entrée du détecteur, exprimé en $\text{photon} \cdot \text{cm}^{-2}$ par photon source émis dans la matrice en béton) multiplié par la surface du capot du détecteur Ge HP (Étape 5) qui est égale à $31,17 \text{ cm}^2$. Enfin, l'efficacité intrinsèque du détecteur est calculée (Étape 6) avec un tally F8 (histogramme des dépôts d'énergie dans le cristal de Ge HP, c'est-à-dire le spectre gamma en coups par photon source entrant dans le détecteur), avec des photons source entrant dans le détecteur sous un angle d'incidence normal, soit $\varepsilon_{\text{intrinsèque}}(1383,9 \text{ keV}) = 0,2163 \pm 0,0002$.

In fine, l'efficacité de détection globale est donnée par :

$$\varepsilon(1383,9 \text{ keV}) = F5(1383,9 \text{ keV}) \times S_{\text{capot}} \times F8(1383,9 \text{ keV}) \quad (5.2)$$

Les taux de photofission et efficacités de détection simulés en fonction de la profondeur à partir de la surface de la matrice bétonnée et pour chaque échantillon d'uranium sont reportés dans le Tableau 5.2. Le taux de photofission est 14,6 fois plus important à 5 cm de profondeur qu'à 50 cm. Il existe également un facteur 800 entre l'efficacité de détection à 5 cm et à 50 cm pour un photon de 1383,9 keV. On peut donc s'attendre à observer un facteur 11600 entre le nombre de rayonnements gamma détectés à ces deux profondeurs.

TABLEAU 5.2 – Résultats de simulation pour les échantillons d’uranium placés dans la matrice en béton.

Profondeur (cm)	UA		UHE	
	$\tau_{\text{photofission}} \text{ (s}^{-1}\text{)}$	$\varepsilon(1383,9 \text{ keV})$	$\tau_{\text{photofission}} \text{ (s}^{-1}\text{)}$	$\varepsilon(1383,9 \text{ keV})$
5	$(9,53 \pm 1,38) \times 10^7$	$(5,08 \pm 0,36) \times 10^{-5}$	$(1,13 \pm 0,16) \times 10^7$	$(6,80 \pm 0,48) \times 10^{-5}$
10	$(7,05 \pm 1,02) \times 10^7$	$(2,33 \pm 0,16) \times 10^{-5}$	$(8,33 \pm 1,21) \times 10^6$	$(3,12 \pm 0,22) \times 10^{-5}$
15	$(5,22 \pm 0,76) \times 10^7$	$(1,08 \pm 0,76) \times 10^{-5}$	$(6,16 \pm 0,89) \times 10^6$	$(1,45 \pm 0,10) \times 10^{-5}$
20	$(3,86 \pm 0,56) \times 10^7$	$(5,07 \pm 0,35) \times 10^{-6}$	$(4,56 \pm 0,66) \times 10^6$	$(6,80 \pm 0,48) \times 10^{-6}$
25	$(2,86 \pm 0,41) \times 10^7$	$(2,40 \pm 0,17) \times 10^{-6}$	$(3,38 \pm 0,49) \times 10^6$	$(3,22 \pm 0,23) \times 10^{-6}$
30	$(2,13 \pm 0,31) \times 10^7$	$(1,15 \pm 0,80) \times 10^{-6}$	$(2,52 \pm 0,37) \times 10^6$	$(1,54 \pm 0,11) \times 10^{-6}$
35	$(1,56 \pm 0,23) \times 10^7$	$(5,52 \pm 0,39) \times 10^{-7}$	$(1,87 \pm 0,27) \times 10^6$	$(7,39 \pm 0,52) \times 10^{-7}$
40	$(1,18 \pm 0,17) \times 10^7$	$(2,67 \pm 0,19) \times 10^{-7}$	$(1,39 \pm 0,20) \times 10^6$	$(3,58 \pm 0,25) \times 10^{-7}$
45	$(8,79 \pm 1,38) \times 10^6$	$(1,30 \pm 0,91) \times 10^{-7}$	$(1,04 \pm 0,15) \times 10^6$	$(1,74 \pm 0,12) \times 10^{-7}$
50	$(6,54 \pm 1,38) \times 10^6$	$(6,37 \pm 0,45) \times 10^{-8}$	$(7,72 \pm 1,12) \times 10^5$	$(8,52 \pm 0,60) \times 10^{-8}$

L’incertitude sur le taux de photofission de 14,5 % est calculée comme la combinaison quadratique de l’incertitude sur le flux de photons de *Bremsstrahlung* (estimée à 14,4 % dans le Chapitre 2) et de l’incertitude sur la section efficace de photofission (estimée à 2 % d’après les données disponibles dans la base EXFOR [108]). L’incertitude relative de 7 % sur l’efficacité de détection correspond à la combinaison quadratique d’une incertitude de 5 % sur l’efficacité intrinsèque et de 5 % sur l’efficacité géométrique.

L’estimation du nombre de rayonnements gamma de 1383,9 keV détectés disponible dans le Tableau 5.3 est calculée avec les données reportées dans le Tableau 5.2 et les paramètres décrits dans l’équation (5.1). L’incertitude associée prend en compte celle sur le taux de photofission, sur les taux de production et sur l’efficacité de détection. Elle s’élève à 22,8 % pour l’UA et à 23,7 % pour l’UHE.

TABLEAU 5.3 – Estimation du nombre de rayonnements gamma retardés de 1383,9 keV détectés en fonction de la profondeur de l’échantillon dans la matrice en béton.

Profondeur (cm)	UA	UHE
5	243752 ± 55565	168661 ± 39994
10	82630 ± 18836	57138 ± 13549
15	28411 ± 6476	19614 ± 4651
20	9861 ± 2248	6816 ± 1616
25	3461 ± 789	2396 ± 568
30	1233 ± 281	851 ± 202
35	439 ± 100	303 ± 72
40	159 ± 36	109 ± 26
45	58 ± 13	40 ± 9
50	21 ± 5	14 ± 3

Le nombre de rayonnements gamma détectés en fonction de la profondeur est ensuite tracé puis ajusté par une fonction exponentielle décroissante de la forme $f(x) = a.e^{-b.x}$. Les paramètres de la fonction d’ajustement sont disponibles sur la Figure 5.3 pour l’UA et l’UHE.

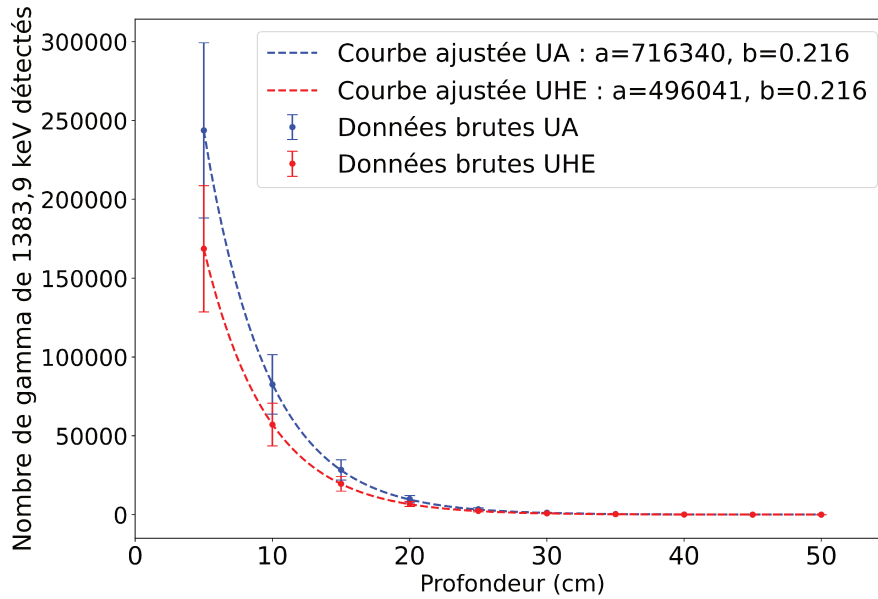


FIGURE 5.3 – Évolution du nombre de rayonnements gamma détectés en fonction de la profondeur dans la matrice en béton et ajustement des données avec une fonction exponentielle décroissante.

5.2.2.3 Comparaison expérience vs. simulation

Il s'agit désormais de comparer le nombre de rayonnements gamma détectés estimé par simulation MCNP et celui obtenu expérimentalement avec les échantillons d'uranium placés derrière 7,2 cm de béton. On se base sur les paramètres d'ajustement disponibles sur la Figure 5.3 pour obtenir les résultats montrés dans le Tableau 5.4 et sur l'estimation des aires nettes des pics d'absorption totale à 1383,9 keV avec le logiciel Genie2000.

TABLEAU 5.4 – Comparaison entre le nombre de rayonnements gamma détectés expérimentalement et celui estimé par simulation MCNP pour les échantillons d'uranium situés à 7,2 cm de profondeur.

	UA	UHE
Expérience	123948 ± 607	100612 ± 372
Simulation	151253 ± 34470	104737 ± 24833
Écart relatif (%)	22,0	4,1

L'accord expérience-calcul est globalement satisfaisant. Les incertitudes indiquées sont, pour les mesures, uniquement liées à la précision statistique (incertitudes relatives largement inférieures au pourcent), et pour les simulations, ce sont celles précisées au paragraphe précédent. Le nombre de coups estimé par simulation MCNP est légèrement plus élevé que celui observé expérimentalement. Ceci peut tout d'abord être dû au fait que la simulation MCNP ne prend pas en compte des éventuelles pertes causées par l'électronique de mesure ou une légère sous-estimation du temps mort par le système d'acquisition (nombre de coups mesuré sous-estimé). Côté simulation, on peut avancer plusieurs hypothèses telles qu'une surestimation du taux de photofission dans les échantillons, une surestimation des taux de production du ^{92}Sr ou encore une mauvaise connaissance de la composition ou de la densité de la matrice en béton. Étant donné la seule incertitude d'environ 23 % sur le nombre de rayonnements gamma détectés estimé par simulation pour les deux échantillons, les intervalles de confiance des résultats expérimentaux et simulés se chevauchent. Les résultats simulés du nombre de

rayonnements gamma détectés peuvent donc être utilisés pour estimer de façon réaliste les limites de détection en fonction de la profondeur dans la galette en béton.

5.2.2.4 Limites de détection en fonction de la profondeur

Pour comprendre le concept de limite de détection, il convient de définir les erreurs de première et seconde espèce [123]. Tout d'abord, le risque de première espèce, appelé risque α ou risque de fausse alarme, est associé à une probabilité α de statuer sur la présence d'un pic alors que le radioélément n'est pas présent. Le risque β de seconde espèce, ou risque de non-détection, est associé à une probabilité β de déclarer l'absence d'un pic alors que le radioélément est effectivement présent. On définit aussi le seuil de décision (SD) qui est la surface nette du pic au-delà de laquelle on annonce en pratique la présence du radioélément. Par définition de SD, on a seulement une probabilité α que le comptage net soit supérieur à SD si le radioélément est effectivement présent (risque de fausse alarme). On définit enfin la limite de détection (LD) qui correspond à la plus petite activité du radioélément qui a une probabilité β de ne pas être détectée (risque de non-détection). Ces concepts sont illustrés sur la Figure 5.4 pour des distributions de résultats de mesure du bruit de fond et du signal à la limite de détection suivant une loi normale.

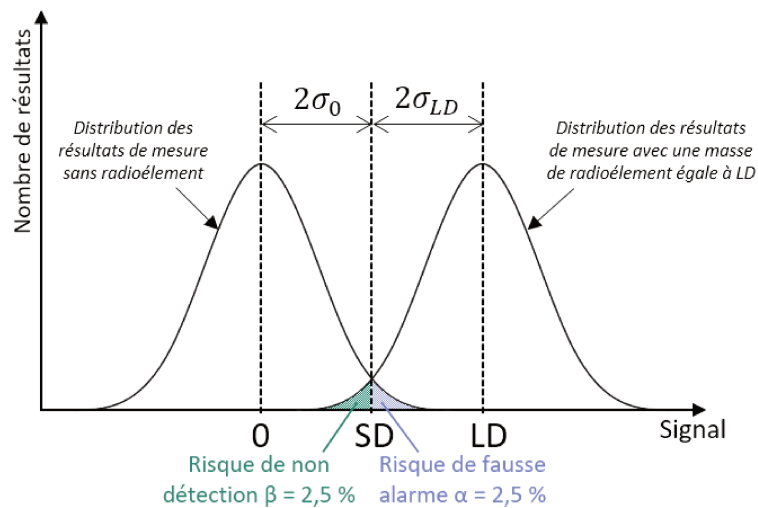


FIGURE 5.4 – Illustration des concepts de seuil de décision (SD) et limite de détection (LD) pour des distributions de résultats de mesure suivant une loi normale [124].

Pour des risques α et β égaux à 2,5 % et pour un pic sans interférence, la limite de détection est donnée par l'équation (5.3), d'après la référence [125].

$$LD(\text{coups}) \approx 3,92\sqrt{2 \times BdF(\text{coups})} \quad (5.3)$$

Avec :

- $LD(\text{coups})$ la valeur de la limite de détection, en coups,
- $BdF(\text{coups})$ l'intégrale du bruit de fond sous le pic, donné en coups, estimé sur une largeur égale à 2,52 fois la largeur à mi-hauteur du pic.

Nous avons effectué une mesure du bruit de fond actif de la galette de béton après 2 h d'irradiation, pendant 68 h avec une réinitialisation du spectre toutes les minutes afin de disposer d'une grande latitude dans l'estimation du bruit de fond pour les différentes mesures. Le bruit de fond sous le pic à 1383,9 keV a ainsi été spécifiquement estimé pour l'UA et pour l'UHE, pour lesquels les temps de refroidissement et de mesure étaient différents. Les valeurs de bruits de fond et les limites de détection associées sont données dans le Tableau 5.5.

TABLEAU 5.5 – Bruit de fond actif et limite de détection associée pour la raie à 1383,9 keV et la matrice en béton.

	UA	UHE
BdF à 1383,9 keV (coups)	16374	59180
LD à 1383,9 keV (coups)	709	1349

Connaissant les paramètres des fonctions ajustant le nombre de gamma retardés détectés en fonction de la profondeur (voir Figure 5.3), il est possible de déterminer la profondeur à partir de laquelle les échantillons d'UA et d'UHE dont nous disposons auraient créé un signal en dessous de la limite de détection. Pour les configurations temporelles utilisées (*cf.* Tableau 5.1), ces profondeurs sont de 32,0 cm pour l'UA et 27,3 cm pour l'UHE. Les échantillons ne peuvent donc pas être détectés au centre de la matrice en béton, équivalent à 50 cm de profondeur, avec cette configuration de mesure. La limite de détection exprimée en gramme se calcule via l'équation (5.4).

$$LD(g) = \frac{LD(\text{coups})}{S_{net}(\text{coups.g}^{-1})} \quad (5.4)$$

Où :

- $LD(g)$ correspond à la limite de détection exprimée en g,
- $LD(\text{coups})$ est la limite de détection exprimée en coups et calculée avec l'équation (5.3),
- $S_{net}(\text{coups.g}^{-1})$ correspond au coefficient de sensibilité, c'est-à-dire le signal net en coups par gramme d'actinide. Cette valeur est déterminée en divisant le nombre de gamma détectés estimé par simulation par la masse de l'échantillon d'uranium.

Les limites de détection en fonction de la profondeur pour l'UA et l'UHE et la configuration de mesure utilisée sont données dans le Tableau 5.6 et sur la Figure 5.5.

TABLEAU 5.6 – Limites de détection (en g) en fonction de la profondeur dans la matrice en béton.

Profondeur (cm)	UA	UHE
5	0,69 ± 0,16	0,07 ± 0,02
10	2,03 ± 0,46	0,21 ± 0,05
15	5,91 ± 1,35	0,63 ± 0,15
20	17,0 ± 3,9	1,80 ± 0,43
25	48,6 ± 11,1	5,12 ± 1,21
30	136 ± 31	14,4 ± 3,4
35	383 ± 87	40,4 ± 9,6
40	1060 ± 242	112 ± 27
45	2920 ± 666	308 ± 73
50	8005 ± 1825	849 ± 201

Les limites de détection de l'UHE sont globalement 10 fois inférieures que celles de l'UA. Cela s'explique par le temps de mesure beaucoup plus élevé pour l'UHE (20,4 h contre 1,3 h), mais aussi par la section efficace de photofission de ^{235}U deux fois plus grande que celle de ^{238}U , ainsi qu'un taux de production plus élevé du ^{92}Sr pour ^{235}U . Enfin, on peut incriminer les effets d'auto-atténuation dans l'échantillon d'UA qui a une épaisseur de 1 cm et une densité de 18,96, alors que l'épaisseur de l'échantillon d'UHE est inférieure à 1 mm. Dans cette configuration de mesure, les limites de détection deviennent rédhibitoires au-delà de 25 cm de béton environ. Cependant, le fait de considérer une matrice de 100 cm de diamètre constituée exclusivement de béton ayant une densité de 2,25 g.cm⁻³ n'est pas représentatif d'une matrice de colis 870 L. Nous allons donc nous pencher sur l'estimation de la limite de détection pour ce cas plus représentatif des colis réels et considérer des pistes d'amélioration de la limite de détection.

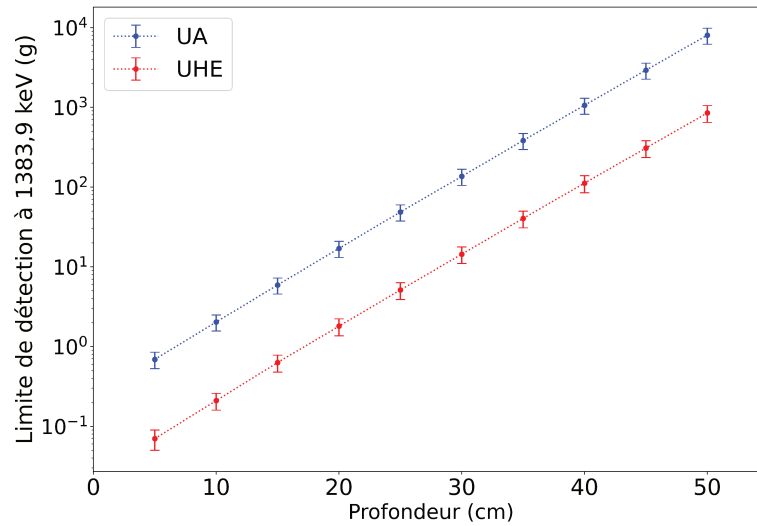


FIGURE 5.5 – Évolution de la limite de détection en fonction de la profondeur pour la matrice en béton.

5.3 Estimation par simulation des limites de détection pour un colis 870 L

5.3.1 Modélisation d'une tranche de colis 870 L

Pour pouvoir appliquer la méthode utilisée pour l'estimation des limites de détection dans une matrice en béton à un colis 870 L, la première étape a été la modélisation d'une tranche de colis 870 L à partir de données recueillies sur des colis réels. Les données disponibles dans le Tableau 5.7 sont des informations recueillies suite à la caractérisation destructive de 10 colis 870 L dans la cellule CADECOL (Casemate DÉcoupe de COLis) de l'installation CHICADE au CEA de Cadarache. Ces informations couplées aux dimensions externes d'un colis 870 L données sur la Figure 5.6 nous ont permis de construire le modèle de colis 870 L schématisé sur la Figure 5.7. Il comporte un conteneur en acier de 5 mm d'épaisseur, un bloc de déchets compactés de 80 cm de diamètre et de masse volumique $1,45 \text{ g.cm}^{-3}$ avec un enrobage de béton de 10 cm et de masse volumique $2,4 \text{ g.cm}^{-3}$ entourant le bloc déchets.

TABLEAU 5.7 – Informations issues de la caractérisation destructive de 10 colis 870 L dans la cellule CADECOL.

N°Chrono	N°CARAÏBE	Volume du colis (L)	Poid du colis avant injection (Kg)	masse du colis après injection (kg)	Masse du mortier (Kg)	Volume du mortier (l)	masse de déchets (kg) (*)	volume de déchets (l) (**)	Densité de déchets (kg/l)
1	C110785	870	870	1924	1054	439.17	673.00	403.83	1.67
2	C74685	870	892	1968	1076	448.33	695.00	394.67	1.76
3	C74678	870	786	1715	929	387.08	589.00	455.92	1.29
4	C75212	870	896	1932	1036	431.67	699.00	411.33	1.70
5	C75245	870	742	1874	1132	471.67	545.00	371.33	1.47
6	C13218	870	734	1702	968	403.33	537.00	439.67	1.22
7	C74629	870	922	1830	908	378.33	725.00	464.67	1.56
8	C74690	870	765	1650	885	368.75	568.00	474.25	1.20
9	C74631	870	916	1840	924	385.00	719.00	458.00	1.57
10	C96602	870	722	1600	878	365.83	525.00	477.17	1.10

(*) : Masse de colis 870 L comprenant la masse des déchets compactés + la masse de l'enveloppe de 870L (197Kg).
 Volume de colis 870 L comprenant le volume des déchets compactés + le volume de l'enveloppe de 870L (27l).
 (**): Densité du béton d'enrobage = 2400 (Kg/m3)

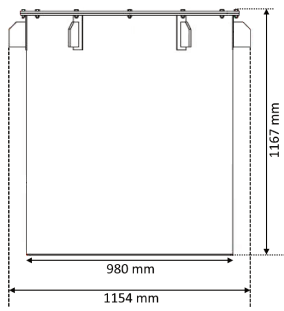


FIGURE 5.6 – Dimensions externes d'un colis 870 L.

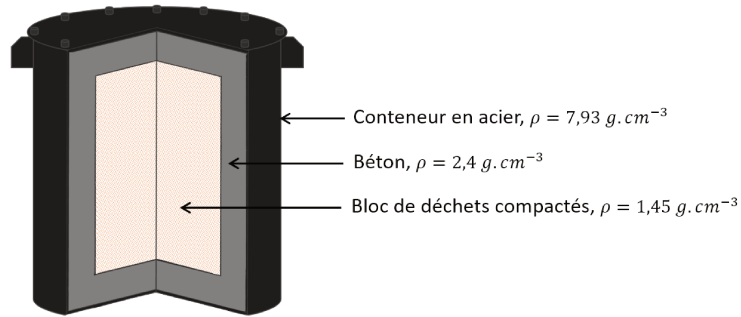


FIGURE 5.7 – Schéma de la structure interne d'un colis 870 L.

Un document interne CEA [126] reprenant les étapes de fabrication d'un colis maquette 870 L dans les années 1990 a permis de définir une composition type du bloc déchets, donnée dans le Tableau 5.8.

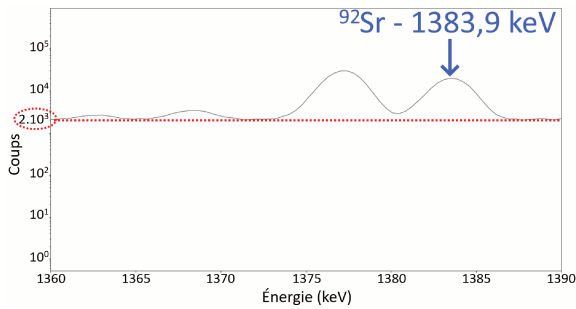
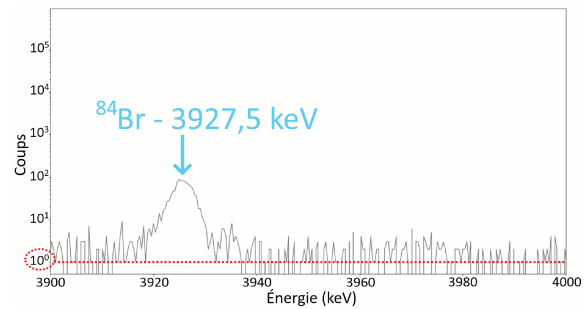
TABLEAU 5.8 – Composition massique choisie pour le bloc déchets du modèle de colis 870 L.

Matériau	Fraction massique (%)	Composition chimique
PVC	46,73	C_2H_3Cl
Métal	43,57	Fer
Coton	9,70	Cellulose $C_6H_{10}O_5$

Il est important de mentionner que tous les colis 870 L sont différents, que ce soit au niveau de l'épaisseur de l'enrobage en béton, de la densité du bloc de déchets (de $1,10 \text{ g.cm}^{-3}$ à $1,76 \text{ g.cm}^{-3}$ pour l'analyse destructive des 10 colis présentée dans le Tableau 5.7) ou encore de la composition des déchets. Comme mentionné dans le Tableau 1.6 du Chapitre 1, ces colis 870 L contiennent des déchets technologiques hétérogènes compactés. D'après les informations assurant la traçabilité des déchets radioactifs générés par les installations du centre CEA de Cadarache, la composition du bloc déchets des colis listés dans le Tableau 5.7 est très diverse. Il peut contenir des déchets métalliques entiers ou morcelés (Fe, Al, Mg...), de la matière plastique et du caoutchouc, de la verrerie, des matières cellulosiques, des gravats ou encore des filtres de ventilation. Les fûts de 870 L sont des colis hétérogènes et donc difficiles à caractériser. Le but de cette section est de modéliser un colis 870 L type afin de fournir des ordres de grandeur des limites de détection plus représentatifs que ceux présentés plus haut avec une matrice en béton. Cependant, il faut garder à l'esprit cette grande variabilité des colis 870 L qui peut significativement modifier la limite de détection. Seule une caractérisation non destructive par imagerie photonique à haute énergie permettra d'obtenir des informations réalistes sur le contenu spécifique de chaque colis.

5.3.2 Raies de rayonnements gamma retardés sélectionnées

Nous avons vu dans la Section 5.2.2.4 que les limites de détection dans la galette en béton en mesurant la raie à $1383,9 \text{ keV}$ émise par le ^{92}Sr sont très élevées au centre du colis (voir Figure 5.5). Afin d'abaisser les limites de détection, il peut être pertinent de se tourner vers l'exploitation de pics de rayonnements gamma retardés à plus haute énergie. En effet, bien que la raie à $1383,9 \text{ keV}$ du ^{92}Sr soit la plus intense du spectre, le facteur limitant à cette énergie est le fond Compton très élevé qui rentre directement en compte dans le calcul de la limite de détection (voir équation (5.3)). Les raies à des énergies plus élevées sont moins concernées par cette problématique du bruit du fond Compton. À titre d'exemple, la comparaison du fond Compton des raies du ^{92}Sr à $1383,9 \text{ keV}$ et du ^{84}Br à $3927,5 \text{ keV}$ est donnée respectivement sur la Figure 5.8 et la Figure 5.9 pour l'échantillon d'UA dans la matrice en béton et la configuration temporelle associée donnée dans le Tableau 5.1.


 FIGURE 5.8 – Raie gamma à 1383,9 keV émise par le ^{92}Sr .

 FIGURE 5.9 – Raie gamma à 3927,5 keV émise par le ^{84}Br .

Les raies à plus haute énergie listées dans le Tableau 5.9 sont donc étudiées afin de déterminer les limites de détection associées. Les périodes radioactives des produits de photofission émetteurs ainsi que les intensités d'émission des gamma retardés sont issues de la base de données JEFF-3.3 [106]. La demi-vie du ^{92}Sr fait toutefois exception puisqu'elle est issue du travail de Leconte *et al.* [117] qui a montré une incohérence dans les différentes bases de données. À noter que l'incertitude sur l'intensité d'émission de certaines de ces raies dépasse 10 %, notamment celle sur la raie à 3927,5 keV qui est annoncée à 12,8 %, ce qui se répercutera sur l'incertitude associée aux limites de détection (nota : à ce stade des études de faisabilité, un ordre de grandeur des limites de détection suffit).

TABLEAU 5.9 – Raies gamma étudiées et caractéristiques associées pour l'évaluation des limites de détection dans un colis 870 L.

Produit de photofission	$T_{1/2}$	E (keV)	I (%)	ΔI (%)	$Y_{c,8}$ (%)	$Y_{c,5}$ (%)
^{92}Sr	2,6 h	1383,9	93,00	0,50	$4,09 \pm 0,66$	$5,17 \pm 0,90$
^{84}Br	31,8 min	2484,1	6,66	0,83	$1,01 \pm 0,16$	$1,71 \pm 0,30$
		3927,5	6,78	0,87		
^{95}Y	10,3 min	2632,4	4,76	0,41	$4,85 \pm 0,74$	$6,12 \pm 0,41^{(a)}$
		3576,0	6,38	0,54		
^{87}Kr	1,3 h	2554,8	(b)	9,23	$1,90 \pm 0,29$	$3,07 \pm 0,53$
		2558,1		3,92		
^{89}Rb	15,4 min	2570,1	10,18	0,64	$3,44 \pm 0,55$	$4,76 \pm 0,82$

(a) Valeur non mesurée par nos soins, issue d'une moyenne des valeurs obtenues par Carrel *et al.* [90].

(b) Ces deux raies émises par le ^{87}Kr seront considérées comme une unique raie dans le calcul des limites de détection étant donné leurs énergies très proches.

5.3.3 Limites de détection du colis 870 L

Les limites de détection sont évaluées de la même manière que dans la Section 5.2.2.4, en estimant le nombre de rayonnements gamma retardés de l'énergie d'intérêt détectés par gramme d'actinide irradié (c'est-à-dire le coefficient de sensibilité global de la méthode). Nous ne disposons pas d'un spectre de bruit de fond actif enregistré avec un colis 870 L. Or, la simulation d'un bruit de fond actif est très complexe car elle dépend des compositions détaillées, y compris certaines traces, des éléments susceptibles d'être activés, et elle donne généralement un résultat peu représentatif de la réalité. Nous utilisons donc le spectre de bruit de fond actif enregistré avec la matrice en béton afin d'utiliser une base plus réaliste pour l'estimation des limites de détection dans un colis 870 L dans ces études préliminaires. De même, il est important de rappeler que les colis 870 L ayant tous un contenu différent (déchets technologiques compactés), le bruit de fond actif présentera une variabilité significative. Mais comme rappelé plus haut, à ce stade, l'objectif principal est d'estimer un ordre de grandeur des limites de détection. Les données nécessaires à l'évaluation des limites de détection dépendant de la raie de rayonnement gamma retardé observée sont disponibles dans le Tableau 5.10. Les temps de refroidissement et de mesure ont été ajustés de sorte à pouvoir observer la quasi-totalité de la décroissance radioactive des produits de photofission (environ 6 périodes).

TABLEAU 5.10 – Données nécessaires à l'évaluation des limites de détection pour chaque raie de rayonnement gamma retardé.

Produit de photofission	T _{1/2}	E (keV)	$\varepsilon_{\text{intrinsèque}}$	t _{refr}	t _{mes}	BdF (coups)	LD (coups)
⁹² Sr	2,6 h	1383,9	0,2163	23 s	10 h	66724	1432
⁸⁴ Br	31,8 min	2484,1	0,1405	5,45 min	3,61 h	7366	476
		3927,5	0,0935			12	19
⁹⁵ Y	10,3 min	2632,4	0,1340	85 s	1,18 h	1418	209
		3576,0	0,1019			33	32
⁸⁷ Kr	1,3 h	2554,8	0,1374	9,5 min	8,74 h	5976	429
		2558,1	0,1372				
⁸⁹ Rb	15,4 min	2570,1	0,1366	5,45 min	1,70 h	2673	287

Afin de calculer les limites de détection en s'affranchissant des effets d'auto-atténuation dans les échantillons étudiés précédemment, le taux de photofission a été simulé avec MCNP dans des cellules d'uranium métallique minces. Ces dernières sont des parallélépipèdes de 2 cm de côté et 1,319 mm d'épaisseur avec une densité de 18,96, résultant en une masse simulée de 10 g. Les taux de photofission en fonction de la profondeur pour l'²³⁸U et l'²³⁵U sont reportés dans le Tableau 5.11.

TABLEAU 5.11 – Taux de photofission (en s⁻¹) en fonction de la profondeur dans une cellule mince d'uranium située dans la matrice de colis 870 L.

Profondeur (cm)	²³⁸ U	²³⁵ U
5 ^(a)	$(5,96 \pm 0,86) \times 10^6$	$(1,13 \pm 0,16) \times 10^7$
10	$(4,34 \pm 0,63) \times 10^6$	$(8,35 \pm 1,21) \times 10^6$
15	$(3,39 \pm 0,49) \times 10^6$	$(6,46 \pm 0,94) \times 10^6$
20	$(2,67 \pm 0,39) \times 10^6$	$(5,08 \pm 0,74) \times 10^6$
25	$(2,10 \pm 0,30) \times 10^6$	$(4,00 \pm 0,58) \times 10^6$
30	$(1,65 \pm 0,24) \times 10^6$	$(3,15 \pm 0,46) \times 10^6$
35	$(1,31 \pm 0,19) \times 10^6$	$(2,49 \pm 0,36) \times 10^6$
40	$(1,03 \pm 0,15) \times 10^6$	$(1,97 \pm 0,29) \times 10^6$
45	$(8,28 \pm 1,20) \times 10^5$	$(1,58 \pm 0,23) \times 10^6$
50	$(6,53 \pm 0,95) \times 10^5$	$(1,24 \pm 0,18) \times 10^6$

(a) Le point à 5 cm se trouve dans l'enveloppe en béton.

L'efficacité de détection en fonction de la profondeur pour chaque énergie de rayonnement gamma retardé étudiée est donnée dans l'Annexe 1. Elle correspond au produit de l'efficacité intrinsèque (*cf.* Tableau 5.10), de l'efficacité géométrique et d'un coefficient d'atténuation dépendant de l'épaisseur de matrice traversée. Les limites de détection calculées pour chaque pic correspondant à un gamma retardé et pour différentes profondeurs dans le colis 870 L sont reportées dans le Tableau 5.12 et dans le Tableau 5.13, respectivement pour l'²³⁸U et l'²³⁵U. Les incertitudes sur la limite de détection sont celles sur l'estimation du nombre de rayonnements gamma retardés détectés. Elles se calculent comme la combinaison quadratique des incertitudes sur le taux de photofission (14,5 %), l'efficacité de détection (7 %), les taux de production des produits de photofission (environ 16 %) et l'intensité d'émission des raies de gamma retardés (entre 0,5 % pour la raie à 1383,9 keV du ⁹²Sr et 12,8 % pour celle à 3927,5 keV du ⁸⁴Br). Ces incertitudes sont données à titre indicatif car les limites de détection dépendent fortement du bruit de fond actif qui, comme signalé précédemment, sera propre à chaque colis. Le retour d'expérience des premières mesures de fûts réels de 870 L permettra de juger de la variabilité du bruit de fond actif.

TABLEAU 5.12 – Limites de détection en ^{238}U (en g) en fonction de la profondeur dans le colis 870 L pour une masse volumique du bloc déchets de $1,45 \text{ g.cm}^{-3}$, avec les temps d’irradiation, de refroidissement et de comptage du Tableau 5.10.

Profondeur (cm)	Raie gamma (keV) et son radioélément émetteur						
	1383,9 (^{92}Sr)	2484,1 (^{84}Br)	2554,8/2558,1 (^{87}Kr)	2570,1 (^{89}Rb)	2632,4 (^{95}Y)	3576,0 (^{95}Y)	3927,5 (^{84}Br)
5	$0,18 \pm 0,04$	$8,4 \pm 2,2$	$1,4 \pm 0,3$	$2,6 \pm 0,6$	$3,9 \pm 0,9$	$0,48 \pm 0,11$	$0,51 \pm 0,13$
10	$0,56 \pm 0,13$	$22,2 \pm 5,7$	$3,6 \pm 0,8$	$6,8 \pm 1,6$	$10,1 \pm 2,4$	$1,2 \pm 0,3$	$1,2 \pm 0,3$
15	$1,2 \pm 0,3$	$44,2 \pm 11,4$	$7,4 \pm 1,7$	$13,5 \pm 3,2$	$19,9 \pm 4,7$	$2,2 \pm 0,5$	$2,3 \pm 0,6$
20	$2,7 \pm 0,6$	$86,4 \pm 22,3$	$14,4 \pm 3,4$	$26,2 \pm 6,2$	$38,7 \pm 9,2$	$4,1 \pm 1,0$	$4,3 \pm 1,1$
25	$5,7 \pm 1,3$	167 ± 43	$27,8 \pm 6,5$	$50,6 \pm 11,9$	$74,4 \pm 17,7$	$7,7 \pm 1,8$	$7,8 \pm 2,0$
30	$12,0 \pm 2,7$	321 ± 83	$53,1 \pm 12,3$	$96,6 \pm 22,8$	142 ± 34	$14,1 \pm 3,3$	$14,2 \pm 3,7$
35	$25,1 \pm 5,7$	611 ± 158	101 ± 23	183 ± 43	267 ± 64	$25,7 \pm 6,1$	$25,7 \pm 6,7$
40	$52,0 \pm 11,9$	1153 ± 298	189 ± 44	344 ± 81	501 ± 119	$46,4 \pm 11,0$	$46,1 \pm 12,0$
45	106 ± 24	2134 ± 551	349 ± 81	633 ± 149	920 ± 219	$82,2 \pm 19,5$	$80,8 \pm 21,0$
50	217 ± 50	3993 ± 1030	650 ± 151	1179 ± 278	1702 ± 405	147 ± 35	144 ± 37

Les limites de détection pour l’ ^{238}U obtenues par simulation pour le colis 870 L avec les configurations de mesure décrites dans le Tableau 5.10 sont plus encourageantes que celles obtenues dans la matrice en béton. Pour le ^{92}Sr , la limite de détection au centre du colis est de $217 \pm 50 \text{ g}$ contre plus de 8 kg dans la configuration utilisée pour la matrice en béton. La raie de rayonnement gamma retardé à 3927,5 keV émise par le ^{84}Br offre la meilleure limite de détection au centre du colis, *i.e.* $144 \pm 37 \text{ g}$. Le tracé de la limite de détection en fonction de la profondeur pour cette raie est donné sur la Figure 5.10. Les résultats obtenus avec la raie à 3576,0 keV du ^{95}Y sont similaires, avec $147 \pm 35 \text{ g}$ au centre. Néanmoins, il peut être plus intéressant en pratique de quantifier l’ ^{238}U avec cette dernière étant donné que le temps de mesure nécessaire pour assister à la décroissance de quasiment tous les noyaux de ^{95}Y est 3 fois plus faible que pour le ^{84}Br (1,2 h contre 3,6 h).

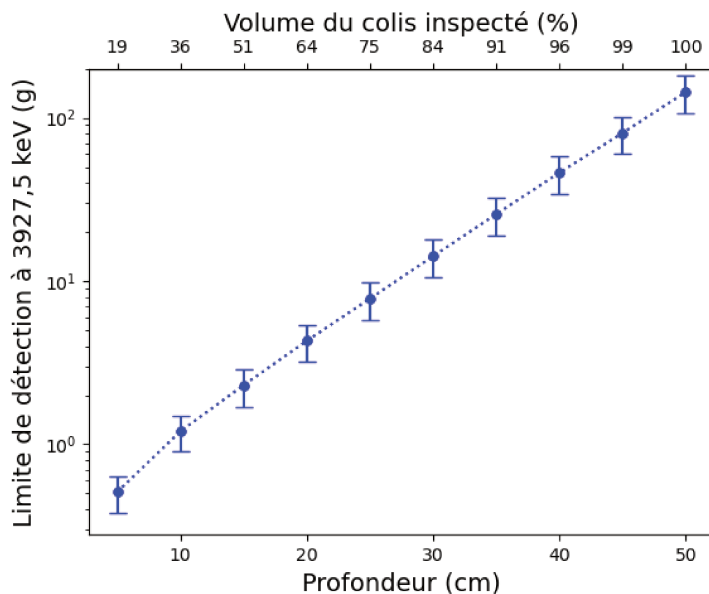


FIGURE 5.10 – Limites de détection dans le colis 870 L pour la raie à 3927,5 keV du ^{84}Br pour l’ ^{238}U pour une densité du bloc déchets de $1,45 \text{ g.cm}^{-3}$.

Pour l’ ^{235}U , comme dans le cas de l’étude sur la galette bétonnée, on observe dans le Tableau 5.13 un abaissement systématique de la limite de détection par rapport au cas de l’ ^{238}U étant donné la section efficace de photofission plus grande de l’ ^{235}U et les rendements de ses produits de photofission observés qui sont également plus élevés. La limite de détection au centre en ^{235}U pour la raie à

1383,9 keV du ^{92}Sr passe à $90,2 \pm 21,4$ g contre 217 ± 49 g pour l' ^{238}U . Les études de faisabilité menées par De Stefano *et al.* [27] utilisant l'activation neutronique avec une phase d'irradiation de 2 h via un générateur de neutrons à forte émission (10^{10} s^{-1}) suivie du comptage des rayonnements gamma retardés avec un détecteur Ge HP 33 % pendant 3 h avaient conclu sur une impossibilité de l'utilisation de cette méthode pour la caractérisation des fûts de déchets 870 L. En effet, les simulations effectuées montraient que pour 10 g d' ^{235}U situés au centre du colis, il était impossible de détecter des rayonnements de gamma retardés pour les raies étudiées dans cette publication, y compris pour la raie à 1383,9 keV du ^{92}Sr . À titre de comparaison, en se basant sur une durée d'irradiation de 2 h et une période de comptage de 3,6 h, la limite de détection en ^{235}U au centre pour cette raie serait de 114 ± 27 g avec l'Interrogation Photonique Active (IPA) et la configuration expérimentale mise en place.

TABLEAU 5.13 – Limites de détection en ^{235}U (en g) en fonction de la profondeur dans le colis 870 L pour une masse volumique du bloc déchets de $1,45 \text{ g.cm}^{-3}$, avec les temps d'irradiation, de refroidissement et de comptage du Tableau 5.10.

Profondeur (cm)	Raie gamma (keV) et son radioélément émetteur						
	1383,9 (^{92}Sr)	2484,1 (^{84}Br)	2554,8/2558,1 (^{87}Kr)	2570,1 (^{89}Rb)	2632,4 (^{95}Y)	3576,0 (^{95}Y)	3927,5 (^{84}Br)
5	$0,07 \pm 0,02$	$2,6 \pm 0,7$	$0,46 \pm 0,11$	$0,99 \pm 0,24$	$1,6 \pm 0,3$	$0,20 \pm 0,04$	$0,16 \pm 0,04$
10	$0,23 \pm 0,05$	$6,8 \pm 1,8$	$1,2 \pm 0,3$	$2,6 \pm 0,6$	$4,2 \pm 0,8$	$0,48 \pm 0,09$	$0,37 \pm 0,10$
15	$0,51 \pm 0,1$	$13,7 \pm 3,7$	$2,4 \pm 0,6$	$5,1 \pm 1,3$	$8,3 \pm 1,6$	$0,92 \pm 0,18$	$0,71 \pm 0,19$
20	$1,1 \pm 0,3$	$26,8 \pm 7,2$	$4,7 \pm 1,2$	$9,9 \pm 2,4$	$16,1 \pm 3,1$	$1,7 \pm 0,3$	$1,3 \pm 0,4$
25	$2,4 \pm 0,6$	$51,9 \pm 13,9$	$9,0 \pm 2,2$	$19,2 \pm 4,7$	$30,9 \pm 6,0$	$3,2 \pm 0,6$	$2,4 \pm 0,7$
30	$5,0 \pm 1,2$	$99,6 \pm 26,8$	$17,2 \pm 4,3$	$36,7 \pm 8,9$	$58,9 \pm 11,5$	$5,9 \pm 1,1$	$4,4 \pm 1,2$
35	$10,4 \pm 2,5$	190 ± 51	$32,7 \pm 8,1$	$69,4 \pm 16,9$	111 ± 22	$10,7 \pm 2,1$	$8,0 \pm 2,2$
40	$21,6 \pm 5,1$	357 ± 96	$61,4 \pm 15,1$	130 ± 32	208 ± 40	$19,3 \pm 3,7$	$14,3 \pm 3,9$
45	$43,9 \pm 10,4$	662 ± 178	113 ± 28	240 ± 59	382 ± 74	$34,2 \pm 6,6$	$25,1 \pm 6,8$
50	$90,2 \pm 21,4$	1238 ± 333	211 ± 52	447 ± 109	708 ± 138	$61,3 \pm 11,9$	$44,6 \pm 12,1$

Les seules raies qui permettraient de détecter 200 g de matière fissile, incertitudes comprises (seuil d'acceptabilité de l'installation d'entreposage CEDRA par exemple), au centre du colis 870 L sont celle à 3576,0 keV du ^{95}Y , celle à 3927,5 keV du ^{84}Br et celle à 1383,9 keV du ^{92}Sr avec des limites de détection respectivement à $61,3 \pm 11,9$ g, $44,6 \pm 12,1$ g et $90,2 \pm 21,4$ g (voir Tableau 5.13). Il est important de rappeler que la durée de mesure étudiée pour la raie à 1383,9 keV est de 10 h, ce qui paraît difficile à mettre en place pour une industrialisation future de la caractérisation de colis de déchets par IPA. Cela paraît plus envisageable pour le ^{95}Y et le ^{84}Br qui nécessitent respectivement 3 et 10 fois moins de temps de mesure pour atteindre les meilleures performances. Pour l' ^{235}U , l'exploitation de la raie à 3576,0 keV du ^{95}Y offre des performances significativement moins bonnes que la raie à 3927,5 keV du ^{84}Br , contrairement au cas de l' ^{238}U . Cela provient de la différence de taux de production plus élevée entre l' ^{235}U et l' ^{238}U pour le ^{84}Br (voir Tableau 5.9). Le tracé de la limite de détection en fonction de la profondeur pour la raie à 3927,5 keV du ^{84}Br , qui semble la plus efficace, est donné sur la Figure 5.11. Il est également intéressant de faire une estimation de la limite de détection au centre en fonction de la densité du bloc déchets. En effet, jusqu'ici, les simulations ont été effectuées avec une densité du bloc déchets de $1,45 \text{ g.cm}^{-3}$ qui correspond à la valeur moyenne de la densité sur l'analyse destructive de 10 colis 870 L. Or, dans le Tableau 5.7, les limites basse et haute de la masse volumique sur les 10 colis étudiés sont de $1,10 \text{ g.cm}^{-3}$ et $1,76 \text{ g.cm}^{-3}$. La même approche appliquée à la raie de 3927,5 keV du ^{84}Br pour ces valeurs enveloppes de la densité fournit des limites de détection en ^{235}U au centre du colis de $20,0 \pm 5,6$ g et $91,1 \pm 24,6$ g, respectivement pour une masse volumique de $1,10 \text{ g.cm}^{-3}$ et $1,76 \text{ g.cm}^{-3}$. Une variation de densité d'environ 25 % fait donc passer les limites de détection du simple au double. Cela met en exergue le fait que l'application de l'IPA sur des colis 870 L nécessite de disposer préalablement d'informations sur la densité et la composition du bloc déchets, qui peuvent être obtenues via l'imagerie haute énergie.

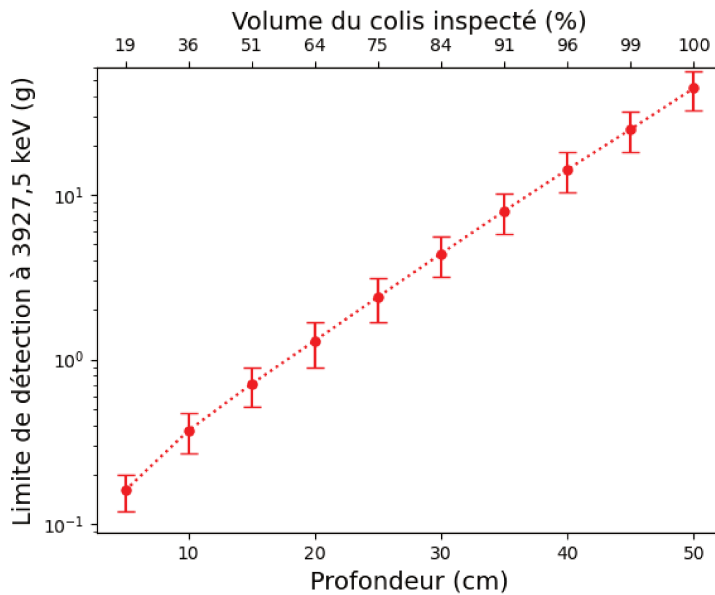


FIGURE 5.11 – Limites de détection dans le colis 870 L pour la raie à 3927,5 keV du ^{84}Br pour l' ^{235}U pour une densité du bloc déchets de $1,45 \text{ g.cm}^{-3}$.

À ce stade de la recherche en IPA, seuls des ordres de grandeur des limites de détection peuvent être fournis pour quelques raies gamma favorables. Cependant, une méthode de différenciation basée sur les ratios de surfaces nettes de raies gamma devra être utilisée avant de pouvoir quantifier uniquement la matière fissile, et cela sous-tend aussi qu'une localisation des actinides puisse être effectuée préalablement, avec les techniques proposées dans les Chapitres 3 et 4. Or, pour de la matière nucléaire située à 50 cm de profondeur, il paraît à ce stade difficile de pouvoir extraire des informations exploitables sur suffisamment de raies gamma pour pouvoir appliquer ces méthodes. Par défaut, si un signal est détecté avec une raie favorable mais que celui des autres raies n'est pas assez intense pour permettre de localiser et différencier les actinides, il devra être attribué à de la matière fissile uniquement, qui plus est localisée au centre du colis car c'est la position la plus pénalisante, de sorte à aller dans le sens de la sûreté en surestimant la masse de matière fissile en présence. Ceci peut évidemment conduire à une grande surestimation de cette dernière si le signal est en réalité dû en majeure partie à des isotopes fertiles (^{238}U).

5.3.4 Impact des neutrons

5.3.4.1 Part des fissions neutroniques

Jusqu'à présent dans ce chapitre, nous n'avons pas considéré les fissions neutroniques. Afin de pousser plus loin l'analyse, la part des fissions neutroniques dans le colis 870 L a été estimée en fonction de la profondeur dans la matrice avec le même modèle de colis que celui utilisé dans la Section 5.3.3. Des cellules d'UA (99,7 % d' ^{238}U et 0,03 % d' ^{235}U) et d'UHE (plus de 90 % d' ^{235}U) de 10 g ont été simulées à différentes profondeurs dans le colis 870 L. La part de fissions neutroniques dans les fissions totales est ensuite estimée avec MCNP. Les valeurs obtenues pour les deux échantillons sont reportées sur la Figure 5.12.

Dans l'échantillon d'UA, la part de fissions neutroniques reste faible, entre 1,9 % à 5 cm de profondeur et 0,9 % au centre du colis. Elle est quasiment constante (environ 1 %) de 10 cm à 50 cm de profondeur. Les fissions ayant lieu dans l'UA sont des fissions rapides étant donné qu'il est composé à 99,7 % d' ^{238}U . La part de fissions neutroniques plus élevée à 5 cm de profondeur, donc à l'entrée du colis, signifie que les photoneutrons rapides créés dans la virole et le béton du colis, par réactions (γ, n), provoquent des fissions dans l'UA puis sont rapidement ralentis, en même temps que le flux photonique interrogateur est rapidement atténué dans le colis. Concernant l'UHE, la part de fissions neutroniques varie entre 13,1 % à 5 cm de profondeur et 5,7 % à 20 cm de profondeur. Au centre du colis, 7,4 % des fissions sont dues aux neutrons. En absolu, le taux de fission neutronique est environ

14 fois plus élevé dans l'échantillon d'UHE que dans celui d'UA, malgré une masse environ 20 fois plus importante de ce dernier. Ceci s'explique par la probabilité de fission de ^{235}U très élevée pour des neutrons thermiques (environ 580 b), très supérieure à celle de ^{238}U pour des neutrons rapides d'énergie supérieure à 1 MeV (de l'ordre du barn, voir Chapitre 1, Figure 1.7). L'évolution avec la profondeur de la part de fissions neutroniques pour l'échantillon d'UHE est très différente de celle de l'UA. Elle nous laisse entrevoir que des processus de thermalisation ont lieu au sein des différents constituants du colis. Afin de mieux comprendre l'évolution de la part de fissions neutroniques au sein du colis 870 L, le flux neutronique a été simulé en fonction de la distance au LINAC.

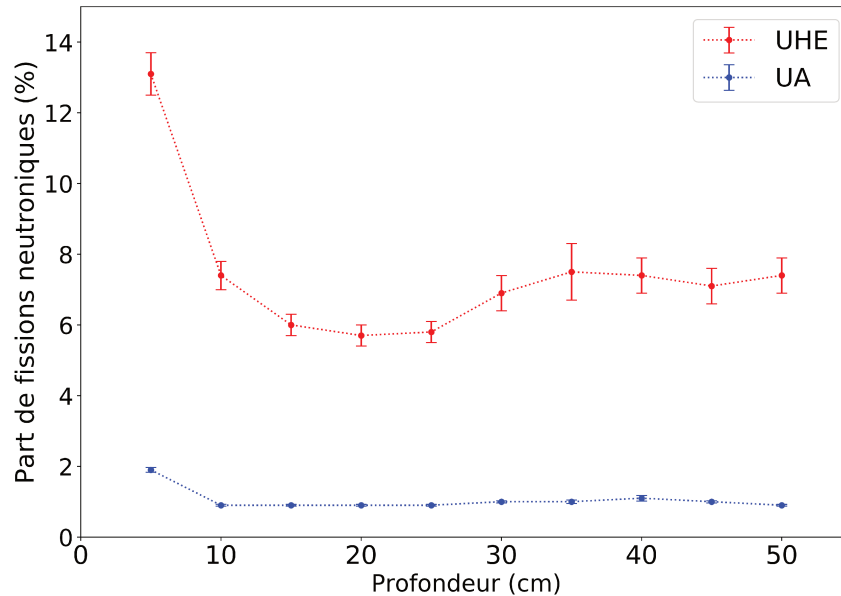


FIGURE 5.12 – Part de fissions neutroniques en fonction de la profondeur dans le colis 870 L pour les deux types d'échantillons.

5.3.4.2 Évolution du flux neutronique avec la profondeur

Dans le cas des mesures d'IPA sur échantillons nus, les neutrons étaient majoritairement produits dans les échantillons eux-mêmes (*cf.* Chapitre 3, Section 3.3.1.1). Il est également intéressant d'obtenir une vision qualitative de la provenance des neutrons dans le colis 870 L. Les simulations ont été effectuées avec le modèle de colis utilisé précédemment au centre duquel une cellule d'uranium appauvri (99,7 % d' ^{238}U et 0,03 % d' ^{235}U) de 10 g est placée (soit à 193,6 cm de la cible du LINAC). Des éléments composant le colis ont été enlevés du modèle numérique les uns à la suite des autres pour estimer les différentes contributions au flux neutronique. La représentation du flux de neutrons total en fonction de la distance au LINAC est donné sur la Figure 5.13. Le flux de neutrons de basse énergie ($E < 1$ eV) est quant à lui représenté sur la Figure 5.14.

Tout d'abord pour une configuration sans colis, donc avec seulement l'échantillon d'UA au centre, on voit que le flux de neutrons total est non nul seulement au niveau de l'uranium lui-même. Cela confirme, comme nous l'avons vu au Chapitre 2, qu'une part des neutrons est produite dans l'échantillon et que le flux de neutrons issu du dispositif d'irradiation (LINAC, collimateur, blindage) est négligeable au niveau du colis. Aucun neutron de basse énergie n'est par ailleurs produit dans l'échantillon d'UA. La courbe représentant le flux de neutrons pour le colis sans le bloc déchet nous apprend qu'une grande partie des photoneutrons sont produits dans les déchets directement (simulés ici avec 44 % de fer). Cela illustre d'autant plus l'importance d'avoir des informations préalables sur la composition du bloc de déchets. Les cas du colis complet et du colis sans sa virole en acier sont similaires du point de vue du flux de neutrons. Sans la virole, la forte augmentation du flux total a lieu plus loin que le début du colis. On peut en conclure que la virole n'est pas le contributeur le plus important au flux de photoneutrons même si elle a un impact visible sur le flux de neutrons. Enfin, le cas du colis simulé sans virole en acier et sans enrobage en béton fournit un flux de neutrons total plus élevé que le cas où

le colis est complet. Ceci s'explique par l'atténuation du flux de photons incident dans la virole (5 mm de fer) et dans le béton, ce qui limite par la suite la création de photoneutrons dans le bloc de déchets. Dans ce même cas, le flux de neutrons de basse énergie est quasiment nul jusqu'au début du bloc de déchets, contrairement au colis complet. Ceci confirme que le béton du colis joue un rôle à la fois de modérateur des neutrons, et d'absorbant des photons interrogateurs. Le bloc de déchets est quant à lui une source et un modérateur de photoneutrons et un absorbant des photons interrogateurs. Enfin, il est important de mentionner que les neutrons de basse énergie représentent environ 10 % du flux neutronique total, ce qui permet en partie d'expliquer la part de fissions neutroniques plus importante observée pour l'échantillon d'UHE que pour celui d'UA sur la Figure 5.12.

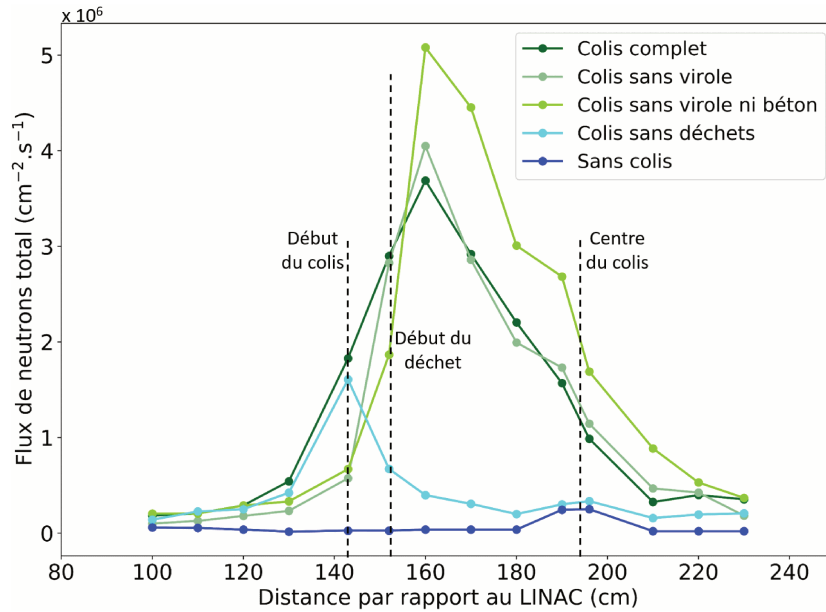


FIGURE 5.13 – Flux neutronique total dans le colis de déchets 870 L pour différentes configurations.

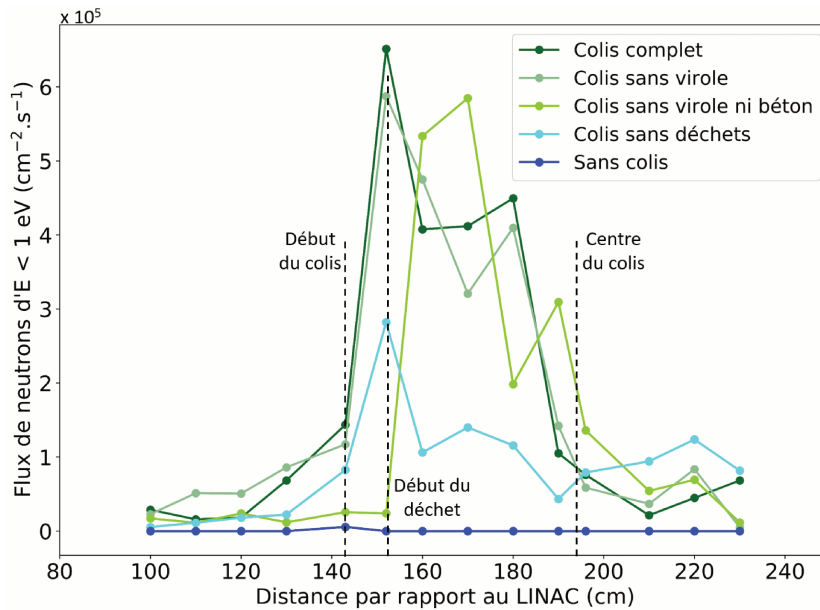


FIGURE 5.14 – Flux neutronique de basse énergie ($E < 1 \text{ eV}$) dans le colis de déchets 870 L pour différentes configurations.

5.3.4.3 Conclusion

Cette étude préliminaire a permis d'évaluer la part de fissions neutroniques et l'évolution du flux de neutrons au sein d'un colis 870 L. Elle met en évidence le fait que les fissions neutroniques ne sont pas négligeables dans le cas d'un échantillon d'UHE puisqu'elles représentent en moyenne 7,5 % des fissions totales. Or, cette étude concerne un seul colis 870 L simulé et laisse entrevoir que la composition de leurs déchets influe particulièrement sur le flux de neutrons via la production de photoneutrons et sur le taux de fissions neutroniques via leur thermalisation. Dans de futures études, cette contribution des neutrons aux fissions peut être prise en compte, se rapprochant ainsi d'une double interrogation photonique et neutronique simultanée comme étudiée dans [58]. Cependant, cela nécessite une très bonne connaissance de la structure interne et de la composition du bloc de déchets du colis 870 L. Dans le cas contraire, il est difficile d'estimer la part des fissions neutroniques. Une autre possibilité est de considérer ces fissions neutroniques comme une part du signal de photofission et donc d'accepter de majorer la masse de matière fissile, ce qui est acceptable du point de vue de la sûreté mais risque de faire dépasser les seuils (par exemple 200 g de matière fissile) en cas de marge insuffisante. La part de fissions neutroniques aura également une incidence sur le signal utile à la différenciation des actinides. En effet, la distribution en masse des produits de fission est différente selon qu'il s'agisse de fission neutronique ou de photofission. Les ratios de raies subiront donc une distorsion en fonction de la part des fissions neutroniques.

5.4 Perspectives pour l'amélioration des limites de détection

5.4.1 Diminution du bruit de fond actif

Les limites de détection au centre du colis 870 L obtenues pour la raie à 1383,9 keV émise par le ^{92}Sr sont de 217 ± 50 g et de $90,2 \pm 21,4$ g, respectivement pour ^{238}U et ^{235}U (voir Tableau 5.12 et Tableau 5.13). Même si cette raie n'est pas aussi performante que la raie à 3927,5 keV du ^{84}Br (limites de détection de 144 ± 37 g pour ^{238}U et de $44,6 \pm 12,1$ g pour ^{235}U), elle n'en reste pas moins intéressante puisqu'elle est la plus intense du spectre. Il existe une possibilité d'améliorer la limite de détection atteignable en diminuant le bruit de fond actif. En effet, comme mentionné dans l'équation (5.3), la limite de détection est proportionnelle à la racine du fond Compton présent sous le pic observé. Réduire les sources de rayonnements gamma d'activation permet de diminuer le bruit de fond actif, ce dernier comportant des raies jusqu'à une énergie de 3369,8 keV émise par le ^{56}Mn (voir Chapitre 2, Tableau 2.16).

La première piste consiste à mieux protéger le système de détection contre les neutrons thermiques et rapides. Au cours du Chapitre 2, nous avons observé la présence de nombreuses raies gamma issues de produits d'activation provenant du détecteur (^{77}Ge , $^{116\text{m}}\text{In}$) ou de l'antimoine présent dans le plomb du blindage (^{124}Sb). Ces produits d'activation étant formés par capture des neutrons de basse énergie, il faut adapter le blindage neutronique afin de diminuer leur nombre incident sur le plomb ou sur le détecteur Ge HP. La configuration actuelle du système de détection et de son blindage est schématisée sur la Figure 5.15. Les photoneutrons produits dans la cellule CINPHONIE durant l'irradiation sont ralentis par le polyéthylène. Ils sont ensuite à même d'activer l'antimoine du plomb présent à la fois sous forme de briques collées au polyéthylène et de rondelles placées autour du détecteur Ge HP. De plus, des neutrons déjà thermalisés dans CINPHONIE peuvent atteindre les rondelles de plomb et le cristal du détecteur depuis le dessous ou l'avant du détecteur qui ne sont pas protégés (photoneutrons produits dans la galette de béton et sa virole puis diffusés et ralentis dans la cellule CINPHONIE).

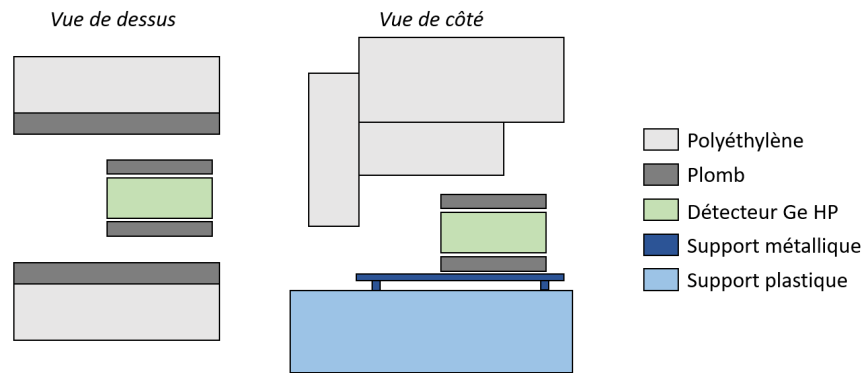


FIGURE 5.15 – Configuration actuelle du système de détection et de son blindage.

Pour pallier ces problèmes, une nouvelle configuration du système de détection et de son blindage neutronique est imaginée sur la Figure 5.16. Elle consiste tout d'abord à ajouter une couche de polyéthylène en dessous du détecteur. Un bloc de polyéthylène comportant un trou cylindrique de la taille du détecteur serait également présent en face avant : cela permettrait de mieux protéger le détecteur durant la phase d'irradiation et de ne pas dégrader la statistique de comptage en phase de mesure. Enfin, ce qui permettrait d'abaisser de façon significative le bruit de fond actif dû à l'activation du germanium, de l'indium et de l'antimoine est l'installation d'une couche de neutrophage tapissant les blocs de polyéthylène. Les neutrons thermalisés par le polyéthylène seraient absorbés par le neutrophage avant d'atteindre le plomb ou le cristal du détecteur. Deux options sont envisagées, soit l'utilisation d'élastobore au B_4C facilement ajustable, soit l'impression 3D d'une coque sur mesure avec un filament composé de nylon et de 25 % en poids de carbure de bore [127] qui peut être mise en place dans le cas de géométries complexes.

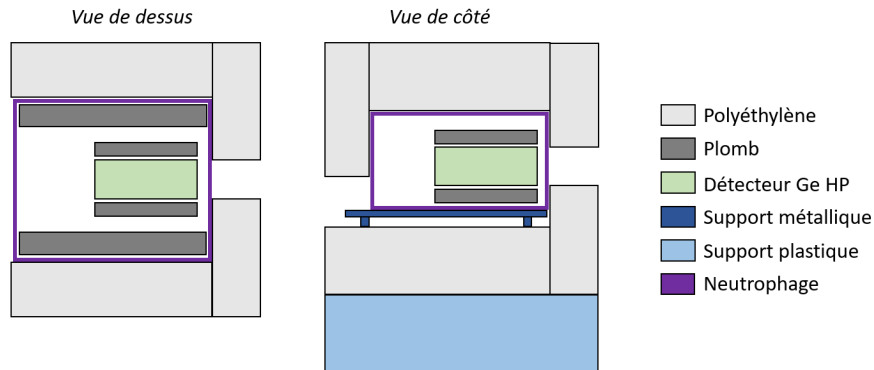


FIGURE 5.16 – Configuration future du système de détection et de son blindage.

La deuxième piste pour réduire le bruit de fond actif, à mener en parallèle, consiste à limiter l'activation du nickel et du manganèse présents dans les aciers des gros composants de la cellule CINPHONIE. L'activation des structures peut être limitée en les éloignant le plus possible du faisceau de photons interrogateurs, en bénéficiant de la variation en énergie qui est associée à l'angle de diffusion Compton. Par exemple, le colis à caractériser peut être placé sur un support en plastique de sorte à le surélever par rapport au plateau tournant porte-colis en métal. Au-delà d'un angle de 8° par rapport au faisceau à partir de la surface du collimateur du LINAC, l'énergie des photons diffusés issus d'un faisceau de *Bremsstrahlung* de 17,5 MeV ne dépasse pas l'énergie seuil de la réaction $^{58}\text{Ni}(\gamma, n)^{57}\text{Ni}$ (12 MeV). Une diminution de l'énergie de fin de faisceau peut aussi être envisagée pour diminuer l'activation du nickel, mais au détriment du taux de photofission. Cependant, cela peut être bénéfique pour réduire l'activation des colis de déchets eux-mêmes (enveloppe et déchets métalliques). Une optimisation de la forme du collimateur en plomb peut également être étudiée afin de mieux maîtriser la diffusion des photons de haute énergie du LINAC qui peuvent créer des photoneutrons dans la cellule de mesure où le colis lui-même (en dehors de la zone interrogée).

Une solution idéale pour la création d'un futur poste de mesure en IPA serait un système de détection isolé de la cellule d'irradiation, de sorte à ce que le colis interrogé se retrouvant devant le détecteur soit le seul objet ayant été irradié par des photons ou des neutrons durant la phase d'irradiation. Ceci pourrait par exemple se faire avec une salle de mesure située au-dessus de la casemate d'irradiation, séparée par une dalle en béton avec seulement une ouverture amovible pour le colis.

5.4.2 Utilisation de scintillateurs NaI(Tl)

Les solutions proposées dans la section précédente pour réduire le bruit de fond actif permettent d'abaisser les limites de détection pour les raies soumises à un fond Compton conséquent (*e.g.* la raie à 1383,9 keV du ^{92}Sr). Des études dans le domaine de la sécurité (détection de matières nucléaires dans les conteneurs maritimes) ont montré que les rayonnements gamma d'énergie supérieure à 3 MeV sont émis principalement par les produits de fission [25, 68]. Plus particulièrement, d'après nos mesures, les pics gamma retardés de photofission d'énergie supérieure à 3369,8 keV (émission du ^{56}Mn) ne sont que très peu concernés par la présence de bruit de fond actif (voir l'exemple sur la Figure 5.9). Elles constituent donc, malgré leur faible intensité, un signal très intéressant pour l'optimisation des limites de détection du fait d'un excellent ratio signal/bruit. Pour rappel, les limites de détection obtenues avec la raie à 3927,5 keV du ^{84}Br sont de $44,6 \pm 12,1$ g pour l' ^{235}U et 144 ± 37 g pour l' ^{238}U au centre du colis 870 L (voir Tableau 5.12 et Tableau 5.13), celles associées à la raie à 3576,0 keV du ^{95}Y sont respectivement de $61,3 \pm 11,9$ g et 147 ± 35 g, alors que celles associées à la raie à 1383,9 keV du ^{92}Sr sont de $90,2 \pm 21,4$ g et 217 ± 50 g. Il existe d'autres raies de rayonnements gamma retardés d'énergie supérieure à 3,4 MeV émises par plusieurs produits de fission ayant des périodes différentes. Un spectre de rayonnements gamma retardés de photofission de haute énergie enregistré pendant 1,3 h, après 45 min de refroidissement et 2 h d'irradiation de l'échantillon d'UA dans la matrice en béton est comparé sur la Figure 5.17 au bruit de fond actif. Même après 45 min de refroidissement, il subsiste des raies à haute énergie émises par les produits de photofission, notamment celles du ^{142}La .

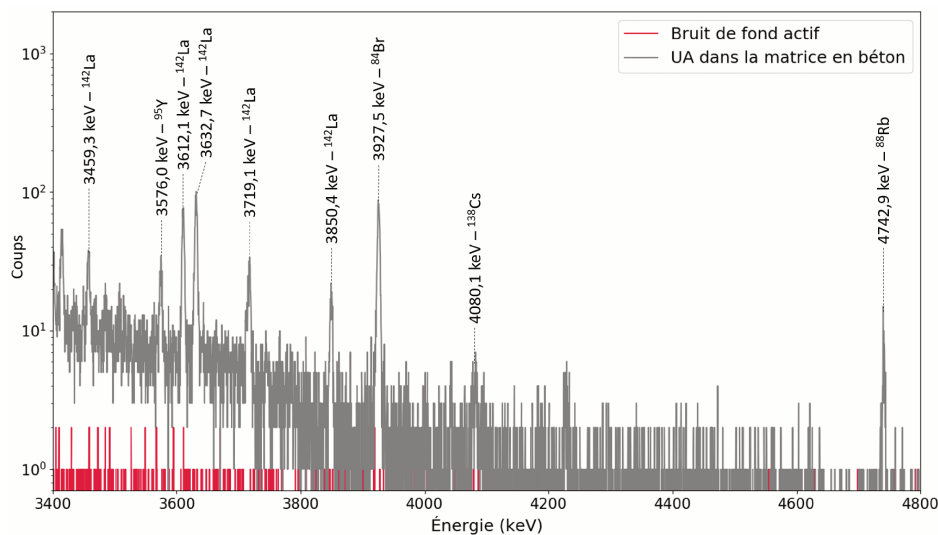


FIGURE 5.17 – Spectre de rayonnements gamma retardés de haute énergie enregistré avec l'échantillon d'UA dans la matrice en béton et bruit de fond actif correspondant.

Toutefois, les raies de haute énergie les plus intenses sont émises par des produits de fission à vie courte. Des exemples sont donnés dans le Tableau 5.14 et le Tableau 5.15. Le bruit de fond actif d'activation étant négligeable au-delà de 3,4 MeV et le fond Compton étant essentiellement dû aux rayonnements gamma retardés d'énergie supérieure, un comptage total avec un seuil de coupure bas à 3,4 MeV pourrait être envisagé pour obtenir une information sur la quantité de matière nucléaire. Dans ce cas, la résolution du détecteur n'est pas cruciale mais si l'on veut pouvoir mesurer des produits de fission à vie courte, qui plus est dans un environnement activé, des détecteurs rapides permettant d'atteindre de forts taux de comptage sont nécessaires. Une option serait d'utiliser un ou plusieurs détecteurs à scintillation NaI(Tl) qui sont rapides (impulsions de moins de 1 μs) et très abordables en

termes de coût (quelques k€ par litre de cristal, soit plus d'une décade de moins que les Ge HP qui sont en outre bien plus sensibles aux dommages par les neutrons rapides).

La première option envisagée (schématisée sur la Figure 5.18) serait d'effectuer la mesure d'une tranche de colis en mode post-irradiation à l'aide d'une couronne de détecteurs NaI(Tl). Dans un premier temps, une tranche serait irradiée pendant la rotation du colis pour créer un taux de photofission le plus homogène possible à une distance par rapport au centre du colis. Dans un second temps, le colis serait translaté verticalement de sorte à ce que la tranche irradiée se retrouve à l'intérieur d'une couronne de détecteurs NaI(Tl), tout en étant en rotation pour continuer l'irradiation d'une autre tranche. Les rayonnements gamma retardés émis par exemple par les produits de photofission listés dans le Tableau 5.14 pourraient être mesurés. Ce concept doit faire l'objet d'études supplémentaires, en particulier pour estimer si les détecteurs NaI(Tl) et l'électronique de mesure associée, bien que non placés dans le plein-flux du LINAC, seraient capables de supporter un tel taux de comptage. Un écran supplémentaire pourrait aussi être implémenté sous la couronne de détecteurs NaI(Tl).

TABLEAU 5.14 – Exemples de produits de fission dont la mesure des rayonnements gamma retardés d'énergie supérieure à 3,4 MeV peut être envisagée en mode post-irradiation.

Produit de photofission	$T_{1/2}$ [106]	E (keV) [106]	I (%) [106]
^{90}Rb	157,0 s	4366,1	7,98
		4135,6	6,74
		3534,3	3,91
		4646,4	2,04
		5187,5	1,08
^{91}Rb	58,4 s	3599,7	10,44
		4078,3	4,09
		3446,5	1,49

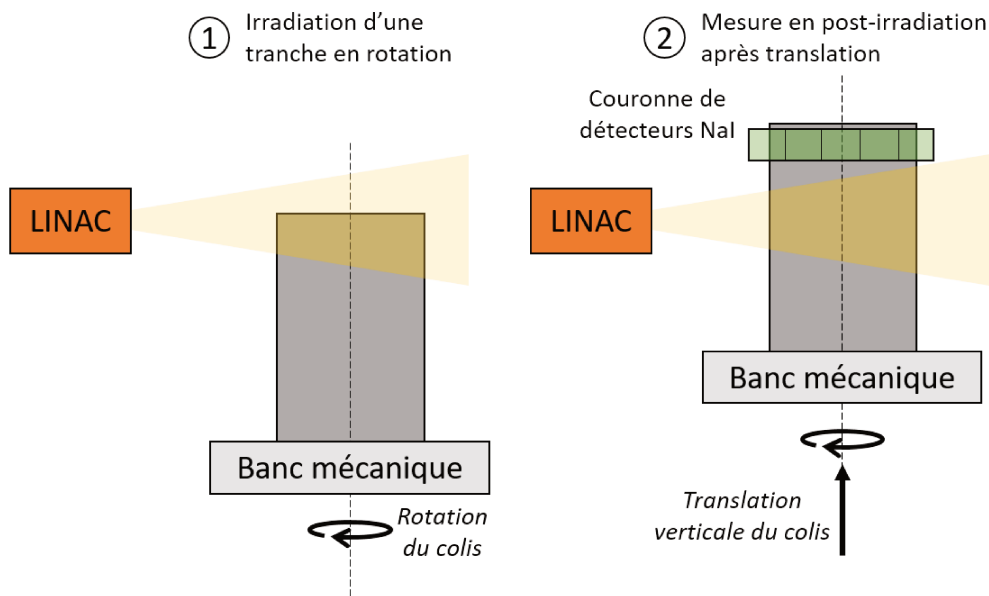


FIGURE 5.18 – Schéma du concept de la mesure en post-irradiation.

La seconde option (schématisée sur la Figure 5.19) consisterait à effectuer des mesures de rayonnements gamma retardés en mode inter-impulsion en positionnant un détecteur NaI(Tl) collimaté à la même hauteur que la cible mais en retrait du LINAC pour ne pas le positionner dans le flux direct de photons interrogateurs. Le colis serait en rotation constante de sorte à mesurer les rayonnements gamma retardés émis directement dans la partie du colis venant d'être irradiée. Des études doivent être

entreprises pour estimer la durée de vie des photoneutrons thermalisés dans la cellule CINPHONIE après chaque impulsion du LINAC, car ceux-ci vont générer par leurs captures radiatives un bruit de fond rédhibitoire (jusqu'à plus de 10 MeV) pendant plusieurs dizaines de ms. La durée séparant deux impulsions sera donc un paramètre crucial et s'il est difficile d'opérer le LINAC à très basse fréquence, par exemple 10 ou 20 Hz, il sera par contre envisageable de délivrer des trains d'impulsions à haute fréquence (typiquement 200 Hz) pendant quelques secondes ou fractions de seconde, espacées de durées de comptage du même ordre.

TABLEAU 5.15 – Exemples de produits de fission dont la mesure des rayonnements gamma retardés d'énergie supérieure à 3,4 MeV peut être envisagée en mode inter-impulsions.

Produit de photofission	$T_{1/2}$ [106]	E (keV) [106]	I (%) [106]	$Y_{c,8}$ (%) [94]
^{88}Br	16,5 s	3932,2	3,59	$1,76 \pm 0,43$
		4148,2	2,90	
		4563,2	2,65	
^{93}Rb	5,8 s	3458,0	5,72	$3,98 \pm 0,11$
		3868,4	5,06	
		3803,7	2,18	
^{95}Sr	23,9 s	3616,1	1,72	$5,36 \pm 0,31$
		4075,1	1,22	
^{97}Y	3,75 s	3401,4	14,22	--
		3549,6	3,10	

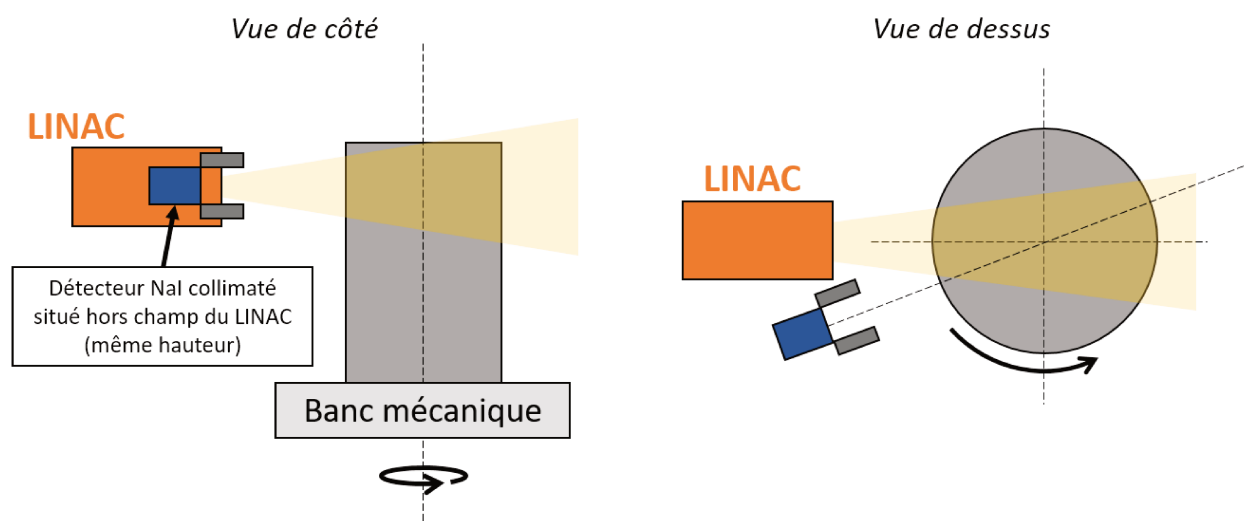


FIGURE 5.19 – Schéma du concept de la mesure en mode inter-impulsions (un seul détecteur est représenté avec son collimateur, mais plusieurs ensembles sont envisageables).

L'avantage de ces deux solutions est qu'elles permettraient, en théorie, d'obtenir à la fois une information sur la localisation de la matière nucléaire en altitude mais également sur le plan angulaire (avec des collimateurs) au sein même d'une tranche de colis. Si le signal obtenu est suffisant, cela permettrait dans un second temps d'appliquer une technique de localisation des actinides en profondeur plus précise, avec un détecteur Ge HP et plusieurs raies gamma émises par un même produit de photofission. Dans le cas où l'utilisation de détecteurs NaI(Tl) permettrait effectivement de réduire les limites de détection grâce au comptage total des rayonnements gamma retardés de haute énergie, la mesure des taux de production des produits de photofission à vie courte deviendrait alors un objectif intéressant pour obtenir une information de quantification de la masse fissile, ou une analyse quantitative plus poussée pourrait être réalisée avec le détecteur Ge HP sur les points chauds identifiés, selon la précision visée.

5.5 Conclusion du chapitre

À travers ce chapitre, les performances de détection et les limitations de la méthode de caractérisation par IPA ont été présentées. Tout d'abord, les limites de détection ont été estimées dans une matrice en béton de 1 m de diamètre. Le modèle numérique permettant d'estimer le nombre de rayonnements gamma détectés a été validé via une comparaison entre l'aire nette mesurée du pic du ^{92}Sr à 1383,9 keV et celle estimée par simulation MCNP, pour des échantillons d'UA et d'UHE à une profondeur de 7,2 cm dans la matrice. Un accord expérience vs. simulation satisfaisant, de 22 % pour le plus élevé, a été observé pour les deux échantillons. Les limites de détection estimées au centre de la matrice en béton sont cependant très élevées dans les conditions de mesure mises en œuvre (2 h d'irradiation et plusieurs heures de comptage), avec plus de 8 kg d'UA et 800 g d'UHE.

Néanmoins, la matrice en béton utilisée est plus pénalisante en termes d'atténuation photonique qu'un colis de 870 L compte-tenu sa masse volumique élevée d'environ $2,3 \text{ g.cm}^{-3}$, contre 1,5 à 2 g.cm^{-3} en moyenne pour ces colis constitués de déchets technologiques compactés et enrobés de béton. Qui plus est, les simulations de la matrice en béton ont été effectuées avec les modèles des échantillons d'uranium réels soumis à des effets d'auto-atténuation importants, en particulier pour celui d'UA qui est très massif. Afin d'obtenir des estimations de performances plus réalistes, des calculs par simulation ont été menés sur un modèle moyen de colis 870 L mis au point grâce à des données recueillies lors de l'analyse destructive de 10 colis 870 L, ainsi qu'aux caractéristiques d'un colis maquette de 870 L construit dans les années 1990. Combinés à l'exploitation du bruit de fond actif obtenu expérimentalement avec la matrice en béton, les calculs par simulation ont permis d'estimer des limites de détection de 217 g et 90 g, respectivement pour ^{238}U et ^{235}U au centre du colis 870 L pour la raie à 1383,9 keV du ^{92}Sr . L'étude de raies de plus haute énergie, au-delà de 3,4 MeV, peu perturbées par le bruit de fond actif dû à l'activation, a permis d'abaisser significativement les limites de détection qui sont par exemple de 144 g pour ^{238}U et 44,6 g pour ^{235}U avec la raie à 3927,5 keV du ^{84}Br .

La contribution neutronique aux fissions a également été abordée au cours de ce chapitre et s'avère non-négligeable pour l'UHE, représentant ainsi plus de 5 % des fissions totales. La production de photoneutrons au sein d'un colis 870 L est un phénomène complexe qui dépend en partie de la composition de son bloc de déchets. En effet, ce dernier a un rôle à la fois de source et de modérateur des photoneutrons, mais aussi d'atténuateur des photons interrogateurs. Ainsi, il est primordial d'obtenir des informations sur le bloc déchets (densité, composition) en parallèle à la caractérisation par IPA, ce qui est envisageable notamment par imagerie à haute énergie. Cela permet à la fois d'estimer la contribution des fissions neutroniques, mais également de corriger au mieux les effets de matrice pour fournir l'estimation de la masse fissile la plus précise possible, en association avec la méthode de correction exploitant le spectre gamma lui-même, présentée dans le Chapitre 4.

Dans la dernière partie de ce chapitre, des pistes pour l'abaissement des limites de détection ont été abordées comme des perspectives avec un enjeu très fort pour la gestion des gros colis de déchets bétonnés. Elles consistent dans un premier temps à diminuer le bruit de fond actif en protégeant mieux le détecteur des neutrons, limitant ainsi l'activation de ses composants et de l'antimoine présent dans le plomb du blindage. Cela aurait pour effet de diminuer les limites de détection pour les raies de rayonnements gamma retardés soumises à un fond Compton important, notamment la plus intense du spectre à 1383,9 keV émise par le ^{92}Sr . Enfin, une autre piste consisterait à se focaliser sur les rayonnements gamma retardés d'énergie supérieure à 3,4 MeV, émis exclusivement par les produits de fission (contribution négligeable de l'activation). Pour ce faire, l'utilisation de détecteurs à scintillation NaI(Tl) en mode post-irradiation ou entre des trains d'impulsions est envisagée. Ces détecteurs étant efficaces et rapides, ils pourraient permettre de mesurer des rayonnements gamma retardés de haute énergie émis par des produits de photofission à vie courte. De plus, ces techniques pourraient potentiellement donner une première information de localisation sur d'éventuels points chauds dans le colis, en altitude et angulairement au sein d'une tranche. Ces réflexions offrent de très intéressantes perspectives pour de futurs travaux. L'utilisation de détecteurs NaI(Tl) en même temps que le fonctionnement du LINAC, en mode trains d'impulsions, ou juste après l'irradiation, devra être validée expérimentalement, le risque étant que l'électronique de mesure soit saturée, ou que l'activation du cristal de NaI(Tl) soit très importante, ou encore que le photomultiplicateur soit perturbé par le champ électromagnétique du LINAC.

Conclusion et perspectives

L'objectif de cette thèse était de contribuer au développement d'une méthode de caractérisation pour des colis de déchets radioactifs bétonnés et volumineux par interrogation photonique active (IPA). En particulier, les colis de déchets de 870 L entreposés à l'INB 56 du CEA de Cadarache sont concernés par ce type de caractérisation non-destructive. Une quantification précise de la matière nucléaire dans ces colis a été étudiée en vue de les orienter vers la filière de gestion la plus appropriée. La technique de l'IPA qui est développée au Laboratoire de Mesures Nucléaires repose sur la réaction de photofission des actinides et sur la détection de rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission en post-irradiation. Les développements menés au cours de cette thèse reposent à la fois sur la mise en place d'expériences avec un LINAC situé dans la cellule d'irradiation CINPHONIE du CEA de Cadarache, mais également sur des simulations Monte-Carlo effectuées avec le code de calcul MCNP6.1. Les principaux résultats obtenus sur les différents axes déterminés, ainsi que l'identification des limitations actuelles sont rappelés, ce qui permet de dégager des perspectives d'amélioration de la méthode.

Les premiers développements ont concerné la caractérisation du faisceau du LINAC, que ce soit du point de vue des photons de *Bremsstrahlung* interrogateurs ou du flux de photoneutrons qui y est associé. Cette caractérisation était essentielle pour la mesure des rendements des produits de photofission qui sont des données rares dans la littérature, mais indispensables pour effectuer la différenciation et la quantification des actinides au sein des colis de déchets radioactifs. Une méthode basée sur l'activation photonique de matériaux de référence, couplée à des simulations Monte-Carlo avec le code MCNP a été développée. Elle a permis de déterminer la distribution en énergie des électrons du LINAC et le flux de photons associé. Pour la première campagne expérimentale effectuée en 2019, la distribution en énergie des électrons comportait une énergie maximale de 15,8 MeV et le flux de photons produit par le LINAC à 1 m de la cible était de $(1,79 \pm 0,25) \times 10^7$ photons.cm⁻².impulsion⁻¹. Pour la seconde campagne expérimentale menée en 2021, l'énergie de fin de faisceau se situait à 17,5 MeV et le flux de photons à 1 m dans l'axe du faisceau était de $(2,54 \pm 0,37) \times 10^8$ photons.cm⁻².impulsion⁻¹. À partir des caractéristiques du faisceau de photons déterminées expérimentalement, le flux de photoneutrons produits lors de l'irradiation a ainsi pu être calculé avec MCNP. Des mesures d'activation neutronique sur des pastilles SNAC (Spectromètre Neutron à Activation) ont permis de valider ce modèle de calcul des photoneutrons, ce qui a permis par la suite de déterminer la part de fissions neutroniques dans les échantillons d'actinides lors des mesures des taux de production des produits de photofission. La comparaison entre les résultats expérimentaux d'activation neutronique et les simulations nous a permis de valider le modèle MCNP du LINAC, du collimateur et du blindage associé, mais aussi de confirmer l'efficacité du blindage neutronique, notamment l'absorption des photoneutrons thermalisés (par le polyéthylène, boré ou non, autour de la cible du LINAC) par le revêtement en cadmium disposé en sortie de blindage de l'accélérateur. Enfin, le bruit de fond actif de la cellule CINPHONIE, avec ou sans la galette étalon en béton cerclée de fer, a été analysé. La présence de nombreux produits d'activation neutronique issus du dispositif de détection (⁷⁷Ge, ^{116m}In et ¹²⁴Sb), qui n'avaient pas été identifiés lors des études préliminaires par simulation, a ainsi pu être mise en évidence. Une autre observation importante, en vue des études visant à rechercher les limites de détection les plus basses possibles, concerne l'absence de raies issues de produits d'activation au-delà de 3369 keV, raie la plus énergétique émise par le ⁵⁶Mn. Le rapport signal sur bruit des raies des produits de photofission d'énergie encore plus élevée sera donc très favorable. Enfin, l'analyse du bruit de fond actif avec la galette en béton a montré la présence de produits d'activation issus de réactions photonucléaires avec certains composants du béton, ce qui nous donne un aperçu des raies qui seront potentiellement présentes suite à l'irradiation d'un colis de 870 L où les déchets sont bloqués dans un liant hydraulique.

La connaissance des caractéristiques du faisceau du LINAC (spectre en énergie, flux) nous a permis d'effectuer de nouvelles mesures des taux de production cumulatifs des produits de photofission pour

différents actinides. En 2019, 49 et 26 rendements de photofission ont été mesurés pour l' ^{238}U et l' ^{235}U , respectivement. Les mesures avec l'échantillon d' ^{238}U sont cohérentes avec les valeurs publiées dans la littérature et viennent enrichir les bases de données avec des taux de production cumulatifs non publiés jusqu'à présent, à savoir ceux des produits de photofission ^{90}Rb , $^{90\text{m}}\text{Rb}$, $^{99\text{m}}\text{Tc}$, $^{128\text{m}}\text{Sb}$, ^{130}Sn , ^{133}Sb , ^{140}Cs et ^{140}La . Les mesures effectuées avec un échantillon d'UHE ont permis quant à elles d'estimer et de publier les taux de production cumulatifs de ^{92}Y , $^{131\text{m}}\text{Te}$ et ^{134}I pour la photofission de l' ^{235}U pour la première fois. Globalement, les valeurs obtenues pour les taux de production des produits de photofission de l' ^{235}U sont légèrement plus élevées que les valeurs publiées précédemment dans la littérature, ce qui peut potentiellement être expliqué par la mauvaise connaissance de la géométrie réelle du cœur fissile de l'échantillon d'UHE. Ces premiers travaux ont fait l'objet d'une publication dans la revue NIM A [80]. Afin d'apporter de nouveaux résultats, une autre campagne expérimentale a été menée en 2021, avec un faisceau de *Bremsstrahlung* différent, le même échantillon d'UA qu'en 2019 et deux nouveaux échantillons, l'un plus massif d'UHE et l'autre de plutonium. Au total, 28 taux de production cumulatifs ont été mesurés pour l' ^{238}U et 26 pour l' ^{235}U et le ^{239}Pu . Les valeurs obtenues pour l' ^{238}U sont en accord avec celles obtenues en 2019 et avec celles de la littérature. Concernant l' ^{235}U , les valeurs obtenues en 2021 sont inférieures à celles de 2019 et plus en accord avec les rares jeux de données publiés précédemment. Par ailleurs, le taux de production cumulatif de l' ^{132}I a été mesuré pour la première fois pour la photofission de l' ^{235}U lors de cette campagne. Enfin, les valeurs obtenues pour les taux de production cumulatifs lors de la photofission du ^{239}Pu sont supérieures aux valeurs publiées précédemment et ont permis pour la première fois la mesure des taux de production de ^{84}Br , $^{91\text{m}}\text{Y}$, ^{128}Sb et ^{135}I . Ces travaux sont détaillés au travers d'une autre publication dans la revue NIM A [118]. Les données obtenues au cours de la campagne expérimentale de 2021 ont ensuite été utilisées afin d'identifier des couples de produits de photofission utiles pour la différenciation entre les actinides via la mesure de ratios de pics de rayonnements gamma retardés sans contrainte sur leur énergie. Le test de la méthode sur différents échantillons nus (sans matrice de déchets) a montré qu'une composition isotopique cohérente pouvait être déduite de la mesure de ratios dans le cas de mélanges de deux actinides.

En pratique, la technique de différenciation doit être validée pour des actinides au sein d'une matrice, le but final étant la caractérisation de colis de déchets. Une étape cruciale pour la différenciation est la localisation de la matière nucléaire dans la matrice qui affecte directement les ratios de raies. En ce sens, une méthode de localisation des actinides dans une matrice en béton couplant des résultats expérimentaux et des données de simulation a été présentée. Elle a fait l'objet d'une présentation orale lors de la conférence ANIMMA en 2021 et de la publication d'un article dans les actes de la conférence [128]. Elle consiste à exploiter l'atténuation différentielle des rayonnements gamma retardés de photofission à 1435,9 keV et 2639,6 keV émis par le ^{138}Cs . Le ratio des aires nettes de ces deux raies est mesuré dans deux positions de l'échantillon au sein de la matrice et comparé à une carte de distorsion obtenue via des simulations MCNP, ce qui permet d'obtenir un couple (r, θ) compatible avec les deux mesures, r étant le rayon et θ l'angle auquel se situe l'échantillon. Pour l'UA, la position obtenue est $(42 \pm 1,5)$ cm, $(47 \pm 10)^\circ$, pour l'UHE, le résultat est (43 ± 3) cm, $(33 \pm 17)^\circ$, à comparer avec la position réelle de 43 cm pour r et 45° pour θ . Les résultats sont encourageants mais moins précis dans le cas de l'échantillon d'UHE, qui est 20 fois moins massif que celui d'UA, mettant en évidence l'importance d'avoir une bonne statistique de comptage pour les raies du ^{138}Cs .

Cette problématique est également présente pour la différenciation des actinides au sein de la matrice en béton. Lorsque la masse d'uranium est importante, en l'occurrence supérieure à 200 g, l'application de la technique de différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ permet de déterminer un enrichissement correct. Cependant, lorsqu'une masse d'environ 10 g d'UHE est située à une profondeur de 7,2 cm dans la matrice en béton, l'enrichissement en ^{235}U ne peut être précisément évalué à cause de la faible statistique de comptage et de la difficulté à estimer correctement les aires nettes des raies considérées. On peut néanmoins déterminer de manière qualitative la gamme d'enrichissement et distinguer de l'uranium appauvri, naturel ou faiblement enrichi par rapport à de l'uranium fortement enrichi.

Des études par simulation ont également permis de mettre en évidence l'impact de la géométrie de la matière nucléaire sur ses effets d'auto-atténuation, d'une part l'autoprotection vis-à-vis du flux photonique interrogateur et d'autre part l'auto-absorption des rayonnements gamma retardés de pho-

tofission. Pour un échantillon de plus de 200 g tel que celui d'UA utilisé dans ces travaux, les effets d'auto-atténuation peuvent ainsi induire des écarts très importants sur la masse d'uranium estimée (d'un facteur 6,5 pour une raie à 641,3 keV et d'un facteur 3,6 pour une raie à 3927 keV) avec deux hypothèses extrêmes sur la géométrie de l'échantillon, à savoir une sphère ou une plaque fine. Cependant, pour une masse de 10 g plus proche des valeurs attendues dans les colis réels, les effets d'auto-atténuation sont nettement plus faibles (facteurs respectifs de 2,5 et 1,7 à 641,3 keV et 3927 keV).

Pour terminer, les performances de détection et les limitations de la méthode de caractérisation par IPA ont été étudiées. Tout d'abord, les limites de détection ont été estimées dans la matrice en béton utilisée précédemment. Le modèle numérique permettant d'estimer le nombre de rayonnements gamma détectés a d'abord pu être validé via une comparaison entre l'aire nette mesurée du pic à 1383,9 keV du ^{92}Sr et celle estimée par simulation MCNP, pour des échantillons d'UA et d'UHE placés à une profondeur de 7,2 cm dans la matrice, montrant un écart maximal de 22 %. Les limites de détection estimées par simulation au centre de la matrice en béton se sont alors révélées être très élevées dans les conditions de mesure mises en œuvre lors des essais (2 h d'irradiation suivies de plusieurs heures de comptage), s'élevant en effet à plus de 8 kg d'UA et 800 g d'UHE. Afin d'obtenir des estimations de performances plus réalistes (car la matrice étalon utilisée, entièrement constituée de béton de densité 2,25, est très pénalisante en termes d'atténuation photonique), des calculs ont été menés sur un modèle moyen de colis 870 L. Combinés à l'exploitation du bruit de fond actif mesuré expérimentalement avec la matrice en béton, ces simulations ont permis d'estimer des limites de détection de 217 g et 90 g, respectivement pour ^{238}U et ^{235}U au centre du colis 870 L pour la raie à 1383,9 keV du ^{92}Sr . L'étude de raies de plus haute énergie, au-delà de 3,4 MeV et donc de tout bruit de fond dû à l'activation des matériaux non nucléaires, a permis d'abaisser significativement les limites de détection, par exemple 144 g pour ^{238}U et 44,6 g pour ^{235}U avec la raie à 3927,5 keV du ^{84}Br .

L'enjeu de la caractérisation par IPA étant la gestion de gros colis bétonnés, un des objectifs principaux est d'abaisser encore les limites de détection. Pour ce faire, plusieurs pistes peuvent être étudiées. Une solution idéale pour la création d'un futur poste de mesure en IPA serait un système de détection isolé de la cellule d'irradiation, de sorte à ce que le colis interrogé se retrouvant devant le détecteur soit le seul objet ayant été irradié par des photons ou des neutrons durant la phase d'irradiation. Ceci pourrait par exemple se faire avec une salle de mesure située au-dessus de la casemate d'irradiation, séparée par une dalle en béton avec seulement une ouverture amovible pour le colis. Ceci étant difficile à mettre en œuvre, un aménagement de la cellule d'irradiation peut être effectué en premier lieu, d'une part pour optimiser la géométrie en rapprochant le colis de déchets au plus près du LINAC pendant l'irradiation et du détecteur Ge HP pendant la mesure afin de maximiser le signal. Il est aussi nécessaire de diminuer le bruit de fond actif issu du système de détection suite à l'observation de nombreux produits d'activation (^{77}Ge , $^{116\text{m}}\text{In}$ et ^{124}Sb) créés par captures neutroniques dans le cristal de germanium, ses contacts électriques contenant de l'indium et le blindage du détecteur en plomb à l'antimoine. Pour limiter le nombre de neutrons thermiques atteignant le détecteur et le plomb composant le blindage, une plaque de polyéthylène sous le dispositif de détection et une couche de matériau neutrophage entourant le détecteur Ge HP et son collimateur en plomb peuvent être ajoutées. Cela aura pour effet de diminuer le signal sous les raies soumise à un fond Compton important, notamment la plus intense du spectre à 1383,9 keV émise par le ^{92}Sr .

Une autre piste consisterait à se focaliser sur les rayonnements gamma retardés d'énergie supérieure à 3,4 MeV, qui sont émis exclusivement par des produits de fission. Cette méthode de comptage des rayonnements gamma retardés de haute énergie, ne nécessitant pas une bonne résolution spectroscopique, pourrait permettre d'abaisser encore les limites de détection en utilisant des détecteurs à scintillation (NaI(Tl), BGO, plastiques, LaBr_3 ...) de grande efficacité, soit en mode post-irradiation comme avec le détecteur Ge HP, soit durant l'irradiation entre des trains d'impulsions du LINAC. Ces détecteurs rapides par rapport au Ge HP pourraient permettre de mesurer des rayonnements gamma retardés de haute énergie émis par des produits de photofission à vie courte, de l'ordre de la milliseconde à la seconde, inaccessibles en post-irradiation avec des temps de refroidissement de l'ordre de la minute. L'utilisation de ces détecteurs en même temps que le fonctionnement du LINAC (en mode trains d'impulsions) devra être validée expérimentalement car les difficultés potentielles sont

multiples : saturation de l'électronique de mesure, activation du détecteur, dégâts dans les milieux scintillants créés par la dose reçue, perturbations électromagnétiques du photomultiplicateur par le LINAC, *etc.*

Si la mise en place de cette approche de comptage des rayonnements gamma retardés de photofission de haute énergie s'avérait faisable, elle pourrait potentiellement donner une première information de localisation sur d'éventuels points chauds dans le colis. Les travaux réalisés dans [54] ont ainsi montré la possibilité de localiser la matière nucléaire en altitude par un scanning axial, puis dans une coupe réalisée à l'altitude d'intérêt, celle de réaliser une tomographie de photofission en utilisant un détecteur BGO et le comptage des rayonnements gamma retardés d'énergie supérieure à 3 MeV. Il serait aussi possible de multiplier le nombre de ces scintillateurs pour abaisser les limites de détection et améliorer l'information sur la localisation.

Après cette localisation préalable avec des scintillateurs, une autre perspective importante pour la phase de mesure post-irradiation de haute résolution (nécessaire pour l'identification des actinides avec des ratios de raies gamma) consisterait à multiplier le nombre de détecteurs Ge HP autour du colis et à analyser les informations mesurées à l'aide de méthodes bayésiennes [122]. Celles-ci permettent en effet d'appréhender les différents phénomènes comme l'atténuation dans la matrice de déchets en fonction de la localisation et l'auto-atténuation dans la matière nucléaire en fonction de sa masse et de sa géométrie. Tel qu'illustré dans cette référence, la formalisation analytique des différents phénomènes physiques permet d'ajuster, par une approche de Monte-Carlo basée sur de nombreux tirages aléatoires sur les distributions des grandeurs d'influence, la distribution des grandeurs recherchées (masse et répartition de la matière notamment) en fonction des observables mesurées (raies gamma des produits de photofission et éventuellement informations issues d'autres mesures comme l'imagerie photonique ou la composition isotopique par spectrométrie gamma passive) et d'éventuelles données *a priori* (connaissances du producteur sur les colis de déchets, jugements d'experts).

Il est à ce titre important de mentionner que des données issues de mesures par imagerie photonique à haute énergie [97] permettent d'apporter des informations complémentaires et utiles à tous les stades de la caractérisation par IPA. Ces informations sont directement utiles pour la localisation de la matière nucléaire, ainsi que pour la correction des effets de matrice dans le cadre de la différenciation et de la quantification des actinides. Elles pourraient également être directement intégrées dans les données disponibles *a priori* dans le cadre de l'utilisation d'un formalisme Bayésien. Grâce à l'excellente résolution de ces images et à la précision sur la densité, de l'ordre de 10 %, on pourrait même tenter, en cas d'estimation d'une forte masse de matière nucléaire localisée par photofission, de repérer visuellement l'objet incriminé (plusieurs cm³ d'uranium ou de plutonium sous forme métallique ou d'oxyde).

L'imagerie haute énergie pourrait, en outre, être utile au traitement du signal issu des fissions neutroniques. Dans les développements présentés, ce signal n'a pas été pris en compte. Cependant, une étude préliminaire nous a permis d'évaluer par simulation la part de fissions neutroniques et l'évolution du flux de neutrons au sein d'un colis 870 L avec la profondeur. Elle met en évidence le fait que les fissions neutroniques ne sont pas négligeables dans le cas d'un échantillon d'UHE puisqu'elles représentent 7,5 % des fissions totales, en moyenne sur toute la profondeur du colis. Or, cette étude concerne un seul colis 870 L et laisse entrevoir que la composition des déchets influe particulièrement sur le flux de neutrons interrogateur et le taux de fissions neutroniques via la production de photoneutrons *in situ* et leur thermalisation. Dans de futures études, cette contribution aux fissions des neutrons produits dans le colis peut être prise en compte, se rapprochant ainsi d'une double interrogation photonique et neutronique simultanée étudiée dans [58]. Cependant, cela nécessite une très bonne connaissance de la structure interne et de la composition du bloc de déchets du colis 870 L, informations qui peuvent potentiellement être obtenues via l'imagerie haute énergie, notamment en mode bi-énergie qui permet de reconstruire le numéro atomique moyen des matériaux en complément de l'information sur la densité [129]. Dans le cas contraire, il est difficile d'estimer la part des fissions neutroniques mais une autre possibilité est de conduire l'interprétation en les considérant comme une contribution supplémentaire au signal de photofission, ce qui conduit à majorer la masse de matière fissile, démarche acceptable du point de vue de la sûreté mais risquant de faire dépasser les seuils (par exemple 200 g de matière fissile) en cas de marge insuffisante. On estime néanmoins, par simulation MCNP, que la surestimation correspondante ne devrait pas dépasser 15 % dans les colis de 870 L.

Les futurs travaux consacrés au développement de la méthode de l'IPA devront se focaliser sur l'abaissement des limites de détection via l'utilisation de scintillateurs et la mesure de rayonnements gamma retardés de haute énergie. Cependant, les études concernant l'utilisation de détecteurs Ge HP et la mesure des rayonnements gamma retardés en post-irradiation doivent se poursuivre. Elles sont les seules à ce jour à apporter des informations précises concernant la différenciation et la quantification des actinides. Elle peut aussi apporter des informations complémentaires de localisation, angulaires via l'utilisation de plusieurs détecteurs visant le colis sous différents angles ou en profondeur via l'analyse des différentes raies gamma d'un même produit de photofission. De futurs travaux devront être dédiés à l'application des techniques développées au cours de cette thèse sur un colis maquette, puis des colis réels de 870 L.

Annexes

Annexe A

Données détaillées de l'analyse des rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission de l'²³⁸U pour les mesures de 2019

Produit de photofission	Temps de refroidissement	Temps de mesure	Énergie de la raie gamma (keV)	Intensité d'émission (%)	Aire nette (coups)	Taux de production cumulatif (%)
⁸⁴ Br	19,8 min	3,2 h	881,60	41,60	9965 ± 174	1,37
⁸⁷ Kr	5,6 min	7,6 h	402,59	49,60	42830 ± 403	1,99
			2554,80	9,23	3882 ± 70	1,87
			2558,10	3,92	1646 ± 52	1,87
			2011,88	2,88	1497 ± 78	2,01
⁸⁸ Kr	30 s	17 h	2392,11	34,60	24501 ± 164	2,18
			834,83	12,97	18760 ± 287	2,33
			196,30	25,98	17385 ± 582	2,34
			1529,77	10,93	11463 ± 156	2,27
			2029,84	4,53	3860 ± 98	2,46
			2035,41	3,74	3441 ± 96	2,46
			2231,77	3,39	2658 ± 78	2,26
⁸⁸ Rb	30 s	18,8 h	1836,02	22,40	23215 ± 173	2,68
⁸⁹ Rb	16,7 min	1,8 h	1032,00	63,60	14361 ± 159	3,55
			1248,20	45,60	9090 ± 129	3,42
			657,80	11,00	2723 ± 185	3,42
⁹⁰ Rb	30 s	15,2 min	831,68	39,90	1665 ± 103	1,62
			3383,4	6,66	109 ± 15	1,90
^{90m} Rb	3,6 min	25,3 min	831,69	94,09	2228 ± 114	1,06
⁹¹ Sr	5,6 min	2,4 jours	1024,30	33,50	88784 ± 381	3,88
			749,80	23,68	67494 ± 485	3,77
			652,90	8,04	24203 ± 478	3,88
^{91m} Y	30 s	2,6 jours	555,57	95,00	179440 ± 688	2,34
⁹² Sr	30 s	17 h	1383,90	93,00	185418 ± 450	4,05
			1142,39	2,86	6065 ± 195	3,86
⁹² Y	30 s	1,6 jours	561,10	2,39	9197 ± 466	4,80
⁹³ Sr	30 s	1,1 h	1387,11	3,47	843 ± 87	4,44
⁹³ Y	30 s	2,6 jours	266,90	7,42	18045 ± 765	4,70
⁹⁴ Sr	30 s	7,1 min	1427,70	94,42	2913 ± 68	4,35
⁹⁴ Y	30 s	2 h	918,74	56,00	45081 ± 257	4,48
⁹⁵ Y	30 s	1,1 h	954,00	15,80	6711 ± 145	4,65
			1324,00	4,91	2215 ± 98	5,81
			2175,60	7,00	1926 ± 63	5,08
			2632,40	4,76	944 ± 40	4,32
			3576,00	6,38	1023 ± 34	4,89
⁹⁷ Zr	9,6 min	2,8 jours	1149,97	2,62	9894 ± 240	5,95
			355,40	2,09	7902 ± 687	5,90
⁹⁹ Mo	9,6 min	2,8 jours	777,92	4,28	8320 ± 428	4,65
^{99m} Tc	9,6 min	2,8 jours	140,51	89,00	39715 ± 850	4,36

Annexe A Données détaillées de l'analyse des rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission de ^{238}U pour les mesures de 2019

^{101}Mo	30 s	1,5 h	191,92	18,21	5925 ± 326	5,38
			1304,00	2,71	1646 ± 103	5,36
			1599,26	1,75	919 ± 80	5,38
^{101}Tc	30 s	2,9 h	306,83	88,70	105166 ± 462	5,61
^{104}Tc	5,6 min	2,2 h	358,00	89,00	41397 ± 341	3,62
			1612,40	5,79	1929 ± 85	3,22
			1596,70	4,18	1414 ± 82	3,25
^{105}Ru	46,1 min	1,1 jours	316,44	11,12	15466 ± 510	2,77
			262,83	6,58	7300 ± 536	2,63
			413,53	2,27	4035 ± 441	2,98
^{105}Rh	9,6 min	2,8 jours	318,90	19,10	25015 ± 728	2,78
^{128}Sn	30 s	5,9 h	482,30	59,00	14261 ± 336	0,57
			557,30	16,52	4119 ± 303	0,57
^{128}Sb	1,5 h	2,8 jours	754,00	100,00	13089 ± 417	0,20
			314,10	61,00	6821 ± 685	0,22
^{128m}Sb	30 s	1,1 h	753,90	96,40	14579 ± 200	1,61
			314,00	88,69	13222 ± 283	2,03
^{129}Sb	30 s	1,1 jours	812,80	47,60	35168 ± 345	1,09
			683,50	5,66	4447 ± 358	1,11
^{130}Sn	30 s	22,3 min	780,50	56,43	875 ± 119	0,45
^{130}Sb	1 h	4 h	793,40	100,00	8827 ± 176	0,75
			839,52	100,00	9622 ± 169	0,84
			182,33	65,00	2549 ± 306	0,83
			732,00	22,00	2201 ± 172	0,84
^{131}Sb	5,6 min	2,2 h	943,40	46,20	19388 ± 190	2,38
			933,10	25,87	12628 ± 177	2,79
			1207,4	3,88	1463 ± 121	2,38
			854,6	3,23	1465 ± 158	2,50
^{131m}Te	30 s	2,8 jours	793,75	14,10	6057 ± 412	0,70
^{132}Te	40 min	2,8 jours	228,33	88,12	85431 ± 849	4,71
^{132}I	30 s	2,8 jours	954,55	17,57	29802 ± 331	4,88
			630,19	13,32	24867 ± 523	4,87
			727,20	3,16	5752 ± 456	4,85
^{133}Sb	30 s	22,3 min	1096,22	43,00	2165 ± 96	2,59
^{133m}Te	30 s	8 h	912,67	55,27	70144 ± 325	3,17
			647,51	19,40	30434 ± 341	3,63
			863,96	15,64	19427 ± 249	3,05
			914,77	10,94	13995 ± 222	3,20
			978,30	4,86	6903 ± 193	3,67
			1683,23	4,15	3837 ± 108	3,24
^{134}Te	30 s	4,2 h	565,99	18,60	36590 ± 333	5,39
			435,06	18,90	32642 ± 355	5,01
			210,46	22,40	22979 ± 428	5,84
			461,00	10,60	19492 ± 330	5,24
			464,64	5,03	9270 ± 313	5,24
^{134}I	30 s	9,4 h	847,03	95,70	386358 ± 659	7,28
			884,09	65,08	262124 ± 551	7,38
			1072,55	14,93	53751 ± 284	6,97
			595,36	11,10	47620 ± 380	7,24
			1136,16	9,09	33235 ± 246	7,40
			857,29	6,70	26628 ± 270	7,14
			947,86	4,01	16365 ± 221	7,77
			1741,49	2,57	7312 ± 120	7,62
^{135}I	30 s	1,6 jours	1260,41	28,70	103434 ± 363	5,93
			1131,51	22,59	84064 ± 355	5,79
			1457,56	8,67	26695 ± 209	5,50
			1678,03	9,56	28593 ± 197	5,97
			1791,20	7,72	21157 ± 169	5,74
^{135m}Xe	30 s	1,7 jours	526,57	80,84	64938 ± 553	1,32

^{138}Xe	30 s	1,5 h	2015,82	12,25	3750 ± 84	3,75
^{138}Cs	30 s	4,7 h	1435,86	76,30	130311 ± 375	5,95
			1009,78	29,83	61012 ± 293	5,96
			2218,00	15,18	17644 ± 144	5,54
			871,8	5,11	10134 ± 210	5,32
^{140}Cs	30 s	7,1 min	602,36	52,80	2335 ± 106	5,65
^{140}La	9,6 min	2,8 jours	1596,20	95,40	68089 ± 285	5,71
			487,02	46,10	47606 ± 621	5,72
			815,78	23,72	25183 ± 403	5,72
			328,76	20,8	14948 ± 714	5,71
^{141}Ba	2,5 min	1,8 h	190,33	46,00	14922 ± 347	4,69
			343,67	14,44	9776 ± 292	4,97
			457,80	5,01	3560 ± 249	4,45
			462,30	4,88	3471 ± 248	4,45
^{142}Ba	30 s	1,1 h	255,30	20,50	6593 ± 291	5,00
			895,20	13,86	6072 ± 152	4,59
			1204,30	14,23	5082 ± 129	4,21
			1078,70	11,46	4190 ± 128	4,09
			949,10	10,60	4120 ± 134	4,13
			1001,20	9,72	4019 ± 134	4,52
			231,61	12,12	3410 ± 293	4,95
			425,04	5,72	2478 ± 232	4,51
1202,40	5,54	1979 ± 114	4,21			
^{142}La	30 s	10,2 h	641,28	47,40	139288 ± 483	4,89
			1363,00	2,13	4832 ± 140	4,95
^{143}Ce	1,4 h	2,8 jours	293,27	42,80	82517 ± 760	4,41
			664,57	5,69	15052 ± 453	4,36
			721,93	5,39	14039 ± 431	4,36
^{146}Pr	1,4 h	2,4 h	453,88	48,00	5991 ± 197	5,90
			1524,73	15,60	1435 ± 65	5,89
			735,72	7,49	951 ± 134	5,87

Annexe B

Données détaillées de l'analyse des rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission de l'²³⁵U pour les mesures de 2019

Produit de photofission	Temps de refroidissement	Temps de mesure	Énergie de la raie gamma (keV)	Intensité d'émission (%)	Aire nette (coups)	Taux de production cumulatif (%)
⁸⁷ Kr	6,5 min	7,6 h	402,59	49,60	10621 ± 147	4,66
			845,44	7,34	731 ± 69	4,15
			2554,80	9,23	370 ± 25	4,45
⁸⁸ Kr	30 s	17 h	2392,11	34,60	2535 ± 55	5,54
			834,83	12,97	2234 ± 88	5,16
			165,98	3,10	1575 ± 246	5,15
			1529,77	10,93	1124 ± 53	4,47
			2035,41	3,74	298 ± 36	4,53
			2231,77	3,39	249 ± 31	5,72
⁸⁹ Rb	15,6 min	1,9 h	1248,20	45,60	880 ± 43	6,89
⁹¹ Sr	6,5 min	22 h	1024,30	33,50	6820 ± 101	7,62
			749,80	23,68	6493 ± 121	7,92
			652,90	8,04	2296 ± 120	7,34
			652,30	2,98	851 ± 113	7,34
^{91m} Y	30 s	22,1 h	555,57	95,00	20125 ± 181	4,80
⁹² Sr	30 s	17 h	1383,90	93,00	15870 ± 134	7,92
			430,48	3,35	1506 ± 128	7,65
⁹² Y	30 s	22,1 h	934,50	13,90	4358 ± 92	9,01
⁹³ Sr	30 s	1,1 h	168,50	18,43	1614 ± 118	8,08
			888,13	22,10	610 ± 50	7,95
⁹³ Y	30 s	22,1 h	266,90	7,42	4946 ± 188	8,19
¹⁰⁴ Tc	6,5 min	2,2 h	358,00	89,00	2219 ± 98	1,52
¹⁰⁵ Ru	45,7 min	22,2 h	724,30	47,30	3206 ± 102	1,83
			469,37	17,55	1742 ± 115	1,83
			316,44	11,12	1866 ± 152	2,20
			676,36	15,66	1042 ± 105	1,69
¹²⁸ Sn	30 s	5,9 h	482,30	59,00	2967 ± 111	1,38
			557,30	16,52	705 ± 95	1,34
¹²⁸ Sb	1,6 h	20,5 h	314,10	61,00	3968 ± 150	0,99
			743,30	100,00	2788 ± 91	0,91
			754,00	100,00	2540 ± 88	0,84
			526,50	45,00	1627 ± 101	0,87
¹²⁹ Sb	30 s	22,1 h	812,80	47,60	4025 ± 101	2,31
			544,70	18,09	2746 ± 126	2,95
			1030,00	13,33	960 ± 70	2,40
¹³⁰ Sb	1 h	4 h	182,33	65,00	1963 ± 123	1,66
			330,91	78,00	1713 ± 94	1,60
			793,40	100,00	777 ± 54	1,22
			839,52	100,00	864 ± 52	1,42

Annexe B Données détaillées de l'analyse des rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission de ^{235}U pour les mesures de 2019

^{131}Sb	6,5 min	2,2 h	943,40	46,20	1404 ± 58	3,57
			933,10	25,87	632 ± 52	2,82
^{131m}Te	30 s	22,1 h	773,67	39,51	1416 ± 95	2,08
			852,21	21,40	572 ± 79	1,45
^{134}Te	30 s	4,2 h	277,95	21,30	5444 ± 144	5,31
			767,20	29,60	3249 ± 89	5,51
			201,24	8,90	2502 ± 150	4,97
			565,99	18,60	2509 ± 98	5,18
^{134}I	30 s	9,4 h	884,09	65,08	13413 ± 133	7,45
			595,36	11,10	3487 ± 112	8,38
			405,45	7,37	3180 ± 128	8,09
			857,29	6,70	1526 ± 78	8,28
^{135}I	30 s	22,1 h	1260,41	28,70	5217 ± 89	7,23
			1131,51	22,59	4657 ± 91	7,49
			288,45	3,10	2153 ± 176	7,81
			836,80	6,69	1704 ± 86	7,21
			1457,56	8,67	1496 ± 58	7,84
			1678,03	9,56	1316 ± 53	7,05
			1791,20	7,72	997 ± 47	6,95
^{138}Xe	30 s	1,5 h	258,41	31,50	4479 ± 121	7,48
			1768,26	16,73	390 ± 33	6,27
			2015,82	12,25	293 ± 28	7,32
^{138}Cs	30 s	4,7 h	1435,86	76,30	7856 ± 96	7,79
			2218,00	15,18	1060 ± 40	7,78
			2639,59	7,63	448 ± 26	7,85
^{141}Ba	3,5 min	1,8 h	304,19	25,44	3441 ± 109	6,92
^{142}Ba	30 s	1,1 h	985,20	13,86	411 ± 49	5,98
^{142}La	30 s	10,1 h	894,90	8,34	1499 ± 76	6,40
			2397,80	13,27	998 ± 38	6,38
^{143}Ce	1,4 h	20,7 h	293,27	42,80	9883 ± 170	6,41

Annexe C

Données détaillées de l'analyse des rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission de l'²³⁸U pour les mesures de 2021

Produit de photofission	Temps de refroidissement	Temps de mesure	Énergie de la raie gamma (keV)	Intensité d'émission (%)	Aire nette (coups)	Taux de production cumulatif (%)
⁸⁴ Br	20,0 min	3,2 h	881,60	41,60	72262 ± 695	0,88
			1897,60	14,56	24041 ± 318	0,95
			1015,90	6,16	13767 ± 562	1,13
			802,20	5,99	9578 ± 723	0,82
			2484,10	6,66	10377 ± 173	1,03
			3927,50	6,78	8729 ± 95	1,20
			3365,80	2,87	3461 ± 78	0,99
3235,30	2,04	2452 ± 77	0,95			
⁸⁷ Kr	19,0 min	7,6 h	402,59	49,60	250860 ± 1359	1,79
			2554,80	9,23	60419 ± 281	1,97
			2558,10	3,92	25636 ± 211	1,97
			2011,88	2,88	19727 ± 313	1,79
⁸⁸ Kr	19,0 min	16,7 h	2392,11	34,60	400897 ± 659	2,34
			834,83	12,97	191623 ± 938	2,39
			1529,77	10,93	159206 ± 571	2,42
			2029,84	4,53	58502 ± 374	2,39
			2035,41	3,74	48190 ± 358	2,39
			2231,77	3,39	39608 ± 314	2,26
			1518,39	2,15	31391 ± 456	2,42
⁸⁹ Rb	19,0 min	1,7 h	1032,00	63,60	149511 ± 623	3,43
			1248,20	45,60	106176 ± 516	3,44
			657,80	11,00	23747 ± 801	3,47
			2570,10	10,18	17964 ± 177	3,47
⁹¹ Sr	19,0 min	41,6 h	1024,30	33,50	1025360 ± 1223	3,97
			749,80	23,68	666694 ± 1258	3,83
⁹² Sr	19,0 min	16,7 h	1383,90	93,00	2317890 ± 1589	4,09
⁹⁴ Y	19,0 min	1,9 h	918,74	56,00	260995 ± 1461	4,87
			550,9	4,93	19427 ± 892	4,94
⁹⁷ Zr	19,0 min	41,6 h	1149,97	2,62	105437 ± 705	5,83
			1750,24	1,09	39384 ± 399	5,78
⁹⁹ Mo	19,0 min	41,6 h	739,50	12,12	215280 ± 1085	6,01
¹⁰¹ Mo	19,0 min	1,4 h	590,10	19,21	69639 ± 824	6,76
			1012,47	13,02	52392 ± 524	6,49
			1532,49	6,14	23139 ± 337	6,40
¹⁰⁴ Tc	19,0 min	1,9 h	358,00	89,00	178773 ± 1124	3,87
			535,10	14,69	40712 ± 913	3,57
			893,10	10,23	32790 ± 599	3,37
			1596,70	4,18	14101 ± 332	3,80
			1157,40	2,85	11038 ± 479	4,10
			2123,80	2,23	6507 ± 241	3,70

Annexe C Données détaillées de l'analyse des rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission de ^{238}U pour les mesures de 2021

^{105}Ru	19,0 min	26,2 h	724,30	47,30	919049 ± 1370	2,81
			676,36	15,66	275906 ± 1169	2,59
			469,37	17,55	260961 ± 1454	2,76
^{128}Sn	19,0 min	5,6 h	482,30	59,00	93194 ± 1186	0,58
^{128}Sb	1,5 h	40,4 h	754,00	100,00	141414 ± 801	0,22
^{129}Sb	19,0 min	26,2 h	812,80	47,60	403876 ± 1076	1,24
			544,70	18,09	141730 ± 1277	1,36
			966,50	8,14	66692 ± 746	1,16
			683,50	5,66	44137 ± 1051	1,19
^{130}Sb	1,0 h	3,0 h	839,52	100,00	103362 ± 624	0,85
			793,40	100,00	109564 ± 652	0,92
			330,91	78,00	43614 ± 946	0,92
			732,00	22,00	21619 ± 634	0,84
^{131}Sb	19,0 min	1,9 h	943,40	46,20	162988 ± 677	2,66
			933,10	25,87	90233 ± 626	2,63
			1207,40	3,88	13656 ± 458	2,66
			2335,00	1,85	4798 ± 191	2,45
^{131m}Te	19,0 min	41,6 h	852,21	21,40	90922 ± 897	0,86
^{132}Te	40,2 min	41,3 h	228,33	88,12	301254 ± 8404	4,71
^{132}I	19,0 min	41,6 h	667,71	98,7	1128590 ± 1521	4,72
^{133m}Te	19,0 min	7,6 h	912,67	55,27	633754 ± 1055	3,17
			647,51	19,40	208071 ± 1112	3,25
			863,96	15,64	181664 ± 862	3,25
			914,77	10,94	123117 ± 772	3,10
^{134}Te	19,0 min	3,9 h	767,20	29,60	448907 ± 1026	5,67
			565,99	18,60	230043 ± 1096	5,22
			277,95	21,30	123853 ± 1307	5,49
			464,64	5,03	54548 ± 1119	5,32
^{134}I	19,0 min	9,2 h	884,09	65,08	2484463 ± 1738	6,95
			1136,16	9,09	364607 ± 843	7,36
			540,83	7,66	252969 ± 1237	7,49
			1613,80	4,31	159594 ± 543	7,32
^{135}I	19,0 min	38,9 h	1260,41	28,70	1282530 ± 1250	5,86
			1131,51	22,59	919069 ± 1151	5,22
			1678,03	9,56	410034 ± 736	6,06
			1457,56	8,67	388947 ± 768	6,07
			1038,76	7,95	352406 ± 900	5,72
			1791,20	7,72	312318 ± 652	5,83
			836,80	6,69	298895 ± 1021	5,95
			1706,46	4,10	175261 ± 549	6,06
1124,00	3,62	147227 ± 746	5,22			
^{138}Xe	19,0 min	1,4 h	1768,26	16,73	49177 ± 340	5,59
^{138}Cs	19,0 min	4,4 h	462,80	30,75	431772 ± 1294	5,83
			871,80	5,11	100812 ± 759	6,13
			408,98	4,66	58254 ± 1179	5,87
^{141}Ba	19,0 min	1,4 h	304,19	25,44	53238 ± 1030	5,28
			343,67	14,44	37741 ± 988	5,60
			739,20	4,83	23791 ± 682	5,78
^{142}La	19,0 min	9,2 h	641,29	47,40	743908 ± 1202	4,93
			2397,80	13,27	156821 ± 415	4,26
			894,90	8,34	134809 ± 672	4,60
			1901,30	7,16	105968 ± 397	4,78
			1011,40	3,93	66289 ± 560	4,76
			2055,20	2,18	31017 ± 274	4,76
			3313,80	0,95	9499 ± 104	4,55

Annexe D

Données détaillées de l'analyse des rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission de l'²³⁵U pour les mesures de 2021

Produit de photofission	Temps de refroidissement	Temps de mesure	Énergie de la raie gamma (keV)	Intensité d'émission (%)	Aire nette (coups)	Taux de production cumulatif (%)
⁸⁴ Br	19,9 min	2,8 h	881,60	41,60	27836 ± 387	1,79
			2484,10	6,66	2322 ± 84	1,48
			3927,50	6,78	1765 ± 42	1,56
⁸⁷ Kr	5,8 min	7,5 h	402,59	49,60	178305 ± 914	3,09
			2554,80	9,23	16155 ± 149	2,96
			2558,10	3,92	7386 ± 116	3,20
			2011,88	2,88	5792 ± 182	2,95
⁸⁸ Kr	42 s	17,0 h	196,30	25,98	102192 ± 1261	3,46
			834,83	12,97	60791 ± 570	3,48
			1529,77	10,93	34211 ± 325	3,71
			2231,77	3,39	10623 ± 184	3,55
⁸⁹ Rb	16,9 min	1,8 h	1248,20	45,60	28161 ± 258	4,80
			2570,10	10,18	4169 ± 85	4,58
⁹¹ Sr	5,8 min	23,8 h	1024,30	33,50	194351 ± 588	4,68
			749,80	23,68	146727 ± 674	4,47
			925,8	3,85	23247 ± 462	4,68
⁹² Sr	42 s	17,0 h	1383,90	93,00	532609 ± 778	5,17
⁹⁴ Y	7,8 min	1,8 h	918,74	56,00	93343 ± 448	6,03
			1138,9	5,99	9275 ± 271	6,03
⁹⁹ Mo	9,8 min	23,8 h	739,50	12,12	21083 ± 571	4,24
			777,92	4,28	7828 ± 530	4,56
¹⁰¹ Mo	42 s	1,4 h	1012,47	13,02	19380 ± 432	5,43
¹⁰⁴ Tc	5,8 min	2,1 h	358,00	89,00	67074 ± 763	2,00
			1596,70	4,18	1782 ± 188	1,71
			3149,20	1,16	334 ± 35	1,74
¹⁰⁵ Ru	46,2 min	23,2 h	724,30	47,30	85493 ± 557	1,28
			676,36	15,66	29663 ± 534	1,31
			316,44	11,12	23348 ± 897	1,32
¹²⁸ Sn	42 s	5,9 h	482,30	59,00	56919 ± 796	0,93
			680,50	15,93	16847 ± 590	1,12
¹²⁹ Sb	1,5 h	22,4 h	812,80	47,60	114447 ± 637	1,67
			544,70	18,09	49999 ± 766	1,71
¹³⁰ Sb	1,0 h	2,9 h	793,40	100,00	26825 ± 361	1,10
			839,52	100,00	26971 ± 346	1,13
¹³¹ Sb	5,8 min	2,1 h	943,40	46,20	36721 ± 387	2,08
			933,10	25,87	18752 ± 366	1,87
^{131m} Te	42 s	23,9 h	852,21	21,40	14450 ± 527	1,00
			1125,44	11,90	9653 ± 380	1,33

Annexe D Données détaillées de l'analyse des rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission de ^{235}U pour les mesures de 2021

^{132}Te	40,1 min	23,3 h	228,33	88,12	129579 ± 1055	4,57
^{132}I	42 s	23,9 h	667,71	98,70	189532 ± 779	4,89
			522,65	15,99	32271 ± 782	4,87
			630,19	13,32	26635 ± 693	4,93
^{133m}Te	42 s	8,0 h	912,67	55,27	151897 ± 584	3,13
			647,51	19,40	61265 ± 665	3,23
			863,96	15,64	43916 ± 520	3,14
			978,30	4,86	13696 ± 411	3,30
^{134}Te	42 s	4,1 h	767,20	29,60	95959 ± 587	4,12
^{134}I	42 s	9,4 h	884,09	65,08	413068 ± 789	5,00
			1072,55	14,93	88376 ± 471	5,00
			595,36	11,10	78034 ± 708	4,87
^{135}I	42 s	23,9 h	1260,41	28,70	176093 ± 518	4,80
			1131,51	22,59	134550 ± 516	4,44
			1038,76	7,95	48496 ± 460	4,43
			1678,03	9,56	52684 ± 322	4,92
			1457,56	8,67	52650 ± 352	5,09
^{138}Xe	42 s	1,4 h	1768,26	16,73	15536 ± 246	4,34
			258,41	31,50	43390 ± 1181	4,39
^{138}Cs	42 s	4,7 h	1435,86	76,30	271157 ± 573	4,99
			1009,78	29,38	122123 ± 506	5,03
			2218,00	15,18	42828 ± 255	4,87
^{141}Ba	2,7 min	1,7 h	190,33	46,00	62679 ± 942	4,98
			304,19	25,44	54247 ± 828	5,37
			276,95	23,41	48450 ± 836	5,43
			343,67	14,44	30891 ± 758	5,28
^{142}La	1,1 h	8,7 h	641,29	47,4	189460 ± 632	5,30
			894,90	8,34	30424 ± 362	5,37
			1901,30	7,16	18446 ± 188	5,17
			2187,20	3,70	9598 ± 146	5,65
			2971,00	3,13	5885 ± 80	4,97
			2055,20	2,18	5271 ± 136	5,04

Annexe E

Données détaillées de l'analyse des rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission du ^{239}Pu pour les mesures de 2021

Produit de photofission	Temps de refroidissement	Temps de mesure	Énergie de la raie gamma (keV)	Intensité d'émission (%)	Aire nette (coups)	Taux de production cumulatif (%)
^{84}Br	50,1 min	2,3 h	1897,60	14,56	24858 ± 312	1,23
			1015,90	6,16	18493 ± 565	1,46
			2484,10	6,66	7682 ± 164	1,01
			3927,50	6,78	5977 ± 79	1,16
			1463,80	1,96	3631 ± 357	1,13
^{87}Kr	50,1 min	6,8 h	402,59	49,60	958383 ± 1801	2,00
			2554,80	9,23	74263 ± 308	2,17
			2558,10	3,92	31501 ± 229	2,17
^{88}Kr	50,1 min	16,2 h	196,30	25,98	547139 ± 2605	2,23
			2392,11	34,60	525449 ± 752	2,31
			834,83	12,97	426400 ± 1122	2,64
			1529,77	10,93	224744 ± 660	2,28
			2195,84	13,18	222652 ± 544	2,40
			2029,84	4,53	80749 ± 413	2,39
			2035,41	3,74	66486 ± 394	2,39
			2231,77	3,39	51489 ± 342	2,19
			1518,39	2,15	44384 ± 508	2,28
^{89}Rb	9,5 min	1,7 h	1032,00	63,60	30790 ± 352	3,80
			1248,20	45,60	21750 ± 277	4,24
			657,80	11,00	7528 ± 523	4,24
			2570,10	10,18	2629 ± 82	3,81
^{91}Sr	1,8 h	22,9 h	1024,30	33,50	1799550 ± 1512	4,50
			749,80	23,68	1580910 ± 1540	4,86
			652,90	8,04	510024 ± 1294	4,33
			652,30	2,98	189136 ± 1163	4,33
^{91m}Y	9,5 min	20,4 h	555,57	95,00	302322 ± 923	3,19
^{92}Sr	1,8 h	22,9 h	1383,90	93,00	3168600 ± 1831	4,74
			953,30	3,62	148282 ± 809	4,64
			1142,39	2,86	108084 ± 785	4,70
^{92}Y	1,8 h	22,9 h	934,50	13,90	1140370 ± 1291	5,42
^{93}Y	1,8 h	22,9 h	266,90	7,42	406743 ± 2240	3,64
			947,10	2,12	137801 ± 806	5,35
			680,20	0,67	45512 ± 1029	4,79
^{94}Y	9,5 min	1,8 h	918,74	56,00	70359 ± 1167	7,05
^{97}Zr	1,8 h	22,9 h	1147,97	2,62	211786 ± 796	8,81
^{104}Tc	9,5 min	2,1 h	535,10	14,69	22763 ± 609	7,00
			884,40	10,95	12685 ± 394	6,44
			893,10	10,23	13116 ± 394	7,18
			1676,80	7,83	6592 ± 196	7,12
			1612,40	5,79	4632 ± 199	6,59

Annexe E Données détaillées de l'analyse des rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission du ^{239}Pu pour les mesures de 2021

^{105}Ru	1,8 h	22,9 h	724,30	47,30	3994660 ± 2209	6,30
			469,37	17,55	1727880 ± 2019	6,22
			676,36	15,66	1365110 ± 1557	6,30
			316,44	11,12	1076530 ± 2253	6,06
			393,36	3,78	383858 ± 1781	6,22
			875,85	2,50	211630 ± 895	6,93
			969,44	2,11	164478 ± 813	6,66
^{105}Rh	1,8 h	22,9 h	318,90	19,10	1045508 ± 2234	7,07
			306,10	5,10	285966 ± 2103	7,28
^{128}Sn	50,1 min	5,1 h	482,30	59,00	483730 ± 1472	1,14
^{128}Sb	1,8 h	22,9 h	314,10	61,00	1233351 ± 2298	1,20
			754,00	100,00	1639830 ± 1557	1,18
			636,20	36,00	457603 ± 1144	0,86
			628,70	31,00	415906 ± 2162	0,91
^{129}Sb	1,8 h	22,9 h	812,80	47,60	1586460 ± 1505	2,66
			914,50	20,94	584657 ± 1065	2,36
			760,80	3,33	114663 ± 934	2,66
			772,80	3,05	104078 ± 911	2,66
			876,00	2,86	81428 ± 819	2,36
^{130}Sb	50,1 min	3,1 h	793,40	100,00	549107 ± 1050	1,63
			330,91	78,00	569154 ± 1592	1,72
			839,52	100,00	533861 ± 1023	1,63
			182,33	65,00	204834 ± 1730	1,52
			732,00	22,00	100176 ± 888	1,30
^{131}Sb	9,5 min	2,1 h	943,40	46,20	29222 ± 394	2,78
			933,10	25,87	17640 ± 382	2,98
^{134}Te	50,1 min	3,3 h	277,95	21,30	411731 ± 1685	4,88
			201,24	8,90	123133 ± 1767	4,92
^{134}I	50,1 min	8,6 h	857,29	6,70	432668 ± 1051	7,21
			1613,80	4,31	177159 ± 583	6,50
			1741,49	2,57	107325 ± 487	7,34
^{135}I	1,8 h	22,9 h	1260,41	28,70	1844600 ± 1454	5,87
			1131,51	22,59	1416620 ± 1386	5,40
			1038,76	7,95	552762 ± 1017	5,69
			836,80	6,69	476552 ± 1059	5,27
			1678,03	9,56	497395 ± 781	5,65
			1457,56	8,67	499735 ± 818	5,75
			1791,20	7,72	394075 ± 690	5,80
			1124,00	3,62	227641 ± 847	5,40
			1706,46	4,10	211984 ± 563	5,67
^{138}Cs	50,1 min	4,7 h	1435,86	76,30	1214440 ± 1177	8,32
			1009,78	29,83	568411 ± 991	7,97
			2218,00	15,18	178761 ± 486	8,32
			871,8	5,11	103228 ± 795	7,77
			2639,59	7,63	77034 ± 304	8,12
^{141}Ba	9,5 min	1,7 h	739,20	4,83	6597 ± 467	7,07
			625,40	3,59	5681 ± 529	7,64
^{142}La	50,1 min	9,3 h	641,29	47,40	3033430 ± 2131	6,28
			894,90	8,34	460260 ± 1040	6,33
			1901,30	7,16	230758 ± 578	5,99
			1011,40	3,93	202468 ± 856	6,34
			1043,70	2,70	135455 ± 805	6,29
^{143}Ce	1,8 h	22,9 h	293,27	42,80	1816230 ± 2477	4,78
			350,62	3,23	144406 ± 1899	4,78
			231,55	2,05	59502 ± 2382	4,08
			880,46	1,03	34612 ± 787	4,82

Annexe F

**Caractéristiques des produits de photofission
utilisés pour la différenciation entre les actinides
[106]**

Annexe F Caractéristiques des produits de photofission utilisés pour la différenciation entre les actinides

⁸⁴ Br		⁸⁷ Kr		⁸⁸ Kr		⁸⁹ Rb		⁹¹ Sr		⁹² Sr		¹⁰⁴ Tc	
T _{1/2} = 1905,6 s		T _{1/2} = 4578 s		T _{1/2} = 10224 s		T _{1/2} = 924 s		T _{1/2} = 34740 s		T _{1/2} = 9266,4 s		T _{1/2} = 1098 s	
²³⁵ U/ ²³⁸ U ²³⁵ U/ ²³⁹ Pu		²³⁵ U/ ²³⁸ U ²³⁵ U/ ²³⁹ Pu ²³⁸ U/ ²³⁹ Pu		²³⁵ U/ ²³⁹ Pu ²³⁸ U/ ²³⁹ Pu		²³⁵ U/ ²³⁹ Pu		²³⁵ U/ ²³⁹ Pu		²³⁵ U/ ²³⁹ Pu ²³⁸ U/ ²³⁹ Pu		²³⁵ U/ ²³⁸ U	
E (keV)	I (%)	E (keV)	I (%)	E (keV)	I (%)	E (keV)	I (%)	E (keV)	I (%)	E (keV)	I (%)	E (keV)	I (%)
881,60	41,60	402,59	49,60	2392,11	34,60	1032,00	63,60	1024,30	33,50	1383,90	93,00	358,00	89,00
1897,60	14,56	2554,80	9,23	2195,84	13,18	1248,20	45,60	749,80	23,68	953,30	3,62	530,50	15,57
3927,50	6,78	845,44	7,34	834,83	12,97	2195,90	14,56	652,90	8,04	430,48	3,35	535,10	14,69
2484,10	6,66	2558,10	3,92	1529,77	10,93	657,80	11,00	925,80	3,85	241,65	3,07	884,40	10,95
1015,90	6,16	2011,88	2,88	2029,84	4,53	947,70	10,24	652,30	2,98	1145,39	2,86	893,10	10,23
802,20	5,99	1740,52	2,04	2035,41	3,74	2570,10	10,18					1676,80	7,83
3365,80	2,87			2231,77	3,39	1538,10	2,74					1612,40	5,79
1213,30	2,56			362,23	2,25	2007,59	2,54					1596,70	4,18
3045,40	2,50			1518,39	2,15	2707,12	2,07					1157,40	2,85
2029,60	2,08											792,50	2,49
3235,30	2,04											349,30	2,49
												1396,60	2,40
												2123,80	2,23
												1281,80	2,05
¹⁰⁵ Ru		¹²⁸ Sn		¹²⁸ Sb		¹³¹ Sb		¹³⁴ Te		¹³⁵ I		¹⁴² La	
T _{1/2} = 15984 s		T _{1/2} = 3544,2 s		T _{1/2} = 32436 s		T _{1/2} = 1381,8 s		T _{1/2} = 2598 s		T _{1/2} = 23688 s		T _{1/2} = 5466 s	
²³⁵ U/ ²³⁸ U ²³⁵ U/ ²³⁹ Pu		²³⁵ U/ ²³⁸ U Fissile vs. fertile		²³⁸ U/ ²³⁹ Pu		²³⁸ U/ ²³⁹ Pu		²³⁸ U/ ²³⁹ Pu Fissile vs. fertile		²³⁸ U/ ²³⁹ Pu Fissile vs. fertile		Fissile vs. fertile	
E (keV)	I (%)	E (keV)	I (%)	E (keV)	I (%)	E (keV)	I (%)	E (keV)	I (%)	E (keV)	I (%)	E (keV)	I (%)
724,30	47,30	482,30	59,00	754,00	100,00	943,40	46,20	767,20	29,60	1260,41	28,70	641,28	47,40
469,37	17,55	557,30	16,52	743,30	100,00	933,10	25,87	210,46	22,40	1131,51	22,59	2397,70	13,27
676,36	15,66	680,50	15,93	314,10	61,00	642,30	23,10	277,95	21,30	1678,03	9,56	894,90	10,00
316,44	11,12	404,40	5,90	526,50	45,00	1123,60	9,10	435,06	18,90	1457,56	8,67	1901,30	7,16
262,83	6,58	436,70	4,13	636,20	36,00	1854,40	4,44	565,99	18,60	1038,76	7,95	1011,40	3,93
393,36	3,78			628,70	31,00	726,30	4,02	742,59	15,40	1791,20	7,72	2187,20	3,70
875,85	2,50			654,20	17,00	1207,40	3,88	461,00	10,60	546,56	7,15	2971,00	3,13
413,53	2,27			813,60	13,00	854,60	3,23	201,24	8,90	836,80	6,69	1545,80	2,99
969,44	2,11			1181,60	4,50	1267,50	2,91	464,64	5,03	1706,46	4,10	1756,40	2,70
656,21	2,08			727,60	4,00	1722,00	2,40	712,97	4,70	1124,00	3,62	1043,70	2,70
499,30	2,03			1047,50	3,50	301,40	2,36			417,63	3,53	2055,20	2,18
				878,00	3,50	1233,80	2,26			288,45	3,10	1363,00	2,13
				683,90	3,00	2179,90	2,03						
				322,30	3,00								
				317,70	3,00								
				845,80	2,50								
				667,10	2,50								
				1112,70	2,00								
				1078,60	2,00								
				692,90	2,00								

Annexe G

Différenciation ^{238}U vs. ^{239}Pu

Le cas de la différenciation entre l' ^{238}U et le ^{239}Pu possède un intérêt pour détecter du plutonium dans les cas où la matière fertile serait majoritaire dans les colis de déchets. Les courbes représentant la variation du critère δ en fonction de la fraction α de ^{239}Pu sont données sur la Figure G.1 pour un mélange $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$. Les six couples de produits de photofission les plus efficaces pour discriminer le ^{239}Pu et l' ^{238}U sont $^{128}\text{Sb}/^{134}\text{Te}$, $^{128}\text{Sb}/^{135}\text{I}$, $^{88}\text{Kr}/^{128}\text{Sb}$, $^{128}\text{Sb}/^{131}\text{Sb}$, $^{87}\text{Kr}/^{128}\text{Sb}$ et $^{92}\text{Sr}/^{128}\text{Sb}$. À noter que le ^{128}Sb fait partie de tous les couples de produits de photofission discriminants et que sa valeur pour le ^{239}Pu n'avait pas été publiée avant nos mesures effectuées en 2021.

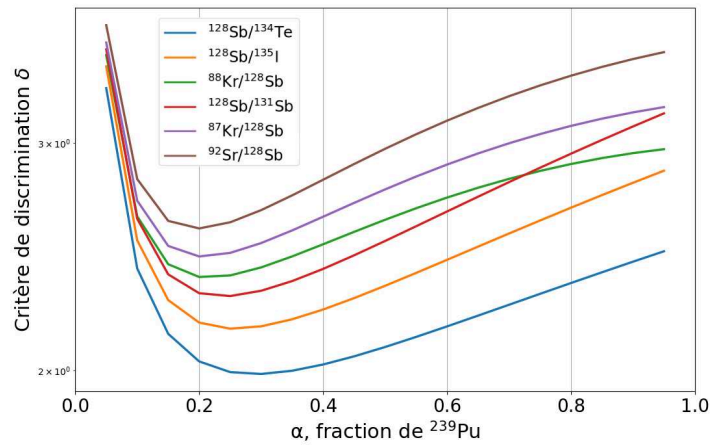


FIGURE G.1 – Fonction $\delta = f(\alpha)$ pour les 6 meilleurs couples de produits de photofission discriminant ^{238}U et ^{239}Pu .

Les courbes donnant l'enrichissement en fonction du ratio de raies corrigé R' sont représentées sur la Figure G.2 et la Figure G.3. Les couples $^{128}\text{Sb}/^{134}\text{Te}$, $^{128}\text{Sb}/^{135}\text{I}$ et $^{128}\text{Sb}/^{131}\text{Sb}$ dont les courbes $\alpha = f(R')$ sont représentées sur la Figure G.3 semblent moins efficaces, leur ratio corrigé R' variant très peu sur la plage d'enrichissement totale.

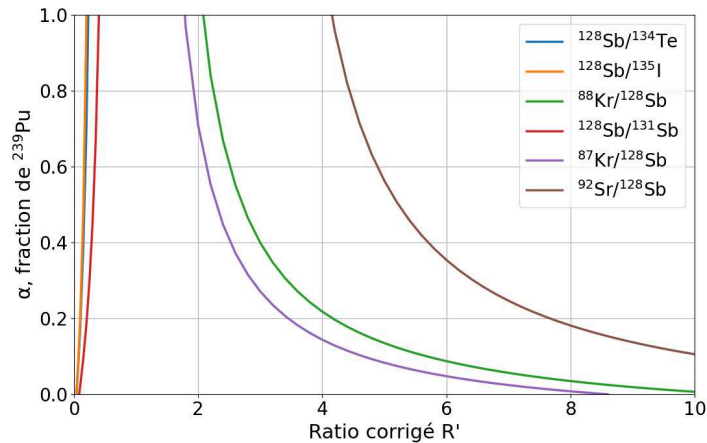
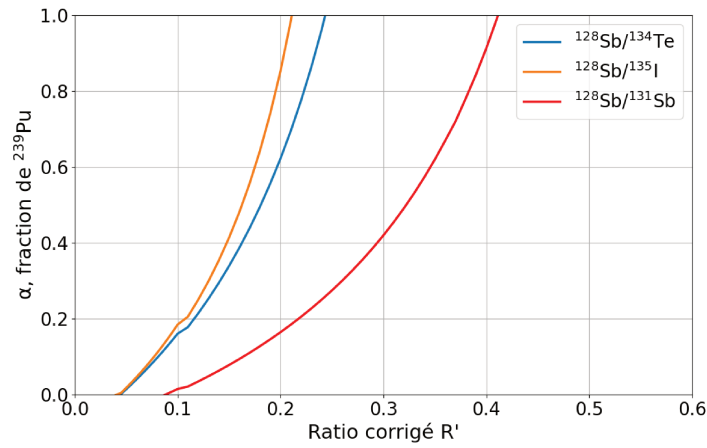


FIGURE G.2 – Courbes $\alpha = f(R')$ pour les couples de PF discriminants dans la configuration $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$.

FIGURE G.3 – Courbes $\alpha = f(R')$ pour les faibles ratios R' dans la configuration $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$.

La liste des rayonnements gamma retardés émis par les produits de photofission utiles pour la différenciation est donnée dans l'Annexe F. L'usage du ^{134}Te pourrait se retrouver limité dans le cas où une matrice dense est présente. En effet, il émet au maximum un rayonnement gamma de 767,2 keV qui serait facilement atténué en présence de matériaux denses.

La méthode de différenciation $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ est testée ci-dessous sur les spectres de rayonnements gamma retardés enregistrés avec les échantillons nus de plutonium et d'UA qui ont permis la mesure des taux de production des produits de photofission du ^{239}Pu et de l' ^{238}U .

■ Échantillon de plutonium

Pour le cas de l'échantillon de plutonium, nous attendons une valeur de α , la fraction massique de ^{239}Pu , proche de 1. Sur les six couples de produits de photofission mis en avant précédemment, nous en avons étudié cinq pour lesquels les rendements des produits de photofission ont été mesurés dans la configuration de mesure « Pu 1 », ce qui n'est pas le cas du ^{131}Sb (voir Tableau 3.11). On se propose d'étudier un ratio de raies par couple de produits de photofission. Les temps de refroidissement et de mesure suivant les 2 h d'irradiation pour chaque produit de photofission sont reportés dans le Tableau G.1. Les ratios de raies corrigés et les enrichissements calculés sont disponibles dans le Tableau G.2.

TABLEAU G.1 – Paramètres temporels de refroidissement et de mesure pour les produits de photofission du plutonium observés pour la différenciation $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$.

Produit de photofission	$T_{1/2}$	Temps de refroidissement	Temps de mesure
^{87}Kr	1,3 h	50,2 min	6,8 h
^{88}Kr	2,8 h	50,2 min	16,2 h
^{92}Sr	2,6 h	1,8 h	22,9 h
^{128}Sb	9,0 h	1,8 h	22,9 h
^{134}Te	41,8 min	50,2 min	3,3 h
^{135}I	6,6 h	1,8 h	22,9 h

Pour les couples $^{87}\text{Kr}/^{128}\text{Sb}$, $^{88}\text{Kr}/^{128}\text{Sb}$, $^{92}\text{Sr}/^{128}\text{Sb}$ et $^{128}\text{Sb}/^{135}\text{I}$, les valeurs obtenues pour la fraction massique de ^{239}Pu sont proches de 1. Toutefois, par rapport aux cas de différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ et $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$, la méthode est ici moins précise pour la différenciation $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$. Cela est attribuable à la faible différence de nombre de masse entre l' ^{238}U et le ^{239}Pu qui rend plus difficile la différenciation. Cela se traduit par des intervalles de confiance sur la valeur de α très larges. Le couple $^{128}\text{Sb}/^{134}\text{Te}$ n'est pas utilisable en l'état, il fournit une valeur de α sans signification physique, à -1,62. Une hypothèse permettant d'expliquer ce résultat est la mauvaise estimation des aires nettes des pics du ^{134}Te . De nouvelles mesures devront être effectuées pour confirmer cette hypothèse et tester plus amplement la différenciation $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$.

TABLEAU G.2 – Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ pour l'échantillon de plutonium.

PF ₁	PF ₂	E ₁ (keV)	E ₂ (keV)	A ₁ (coups)	A ₂ (coups)	R'	α	α_{min}	α_{max}
^{87}Kr	^{128}Sb	2554,8	314,1	74264 ± 309	1233351 ± 2299	1,80 ± 0,25	0,96	0,66	1,67
^{88}Kr	^{128}Sb	834,8	314,1	426400 ± 1123	1233351 ± 2299	2,19 ± 0,29	0,85	0,62	1,31
^{92}Sr	^{128}Sb	1383,9	314,1	3168600 ± 1831	1233351 ± 2299	3,94 ± 0,48	1,21	0,81	2,28
^{128}Sb	^{134}Te	314,1	278,0	1233351 ± 2299	3994660 ± 2210	0,90 ± 0,11	-1,62	-1,83	-1,49
^{128}Sb	^{135}I	314,1	1260,4	1233351 ± 2299	1844600 ± 1454	0,20 ± 0,03	0,98	0,69	1,43

■ Échantillon d'UA

Pour le cas de l'échantillon d'UA, nous attendons une valeur de α , la fraction massique de ^{239}Pu , proche de zéro. Les six couples de produits de photofission mis en avant précédemment ont été considérés. On se propose d'étudier un ratio de raies par couple de produits de photofission. Les temps de refroidissement et de mesure suivant les 2 h d'irradiation pour chaque produit de photofission sont reportés dans le Tableau G.3. Les ratios de raies corrigés et les enrichissements calculés associés sont disponibles dans le Tableau G.4.

TABLEAU G.3 – Paramètres temporels de refroidissement et de mesure pour les produits de photofission de l'UA observés pour la différenciation $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$.

Produit de photofission	T _{1/2}	Temps de refroidissement	Temps de mesure
^{87}Kr	1,3 h	19,0 min	7,6 h
^{88}Kr	2,8 h	19,0 min	16,7 h
^{92}Sr	2,6 h	19,0 min	16,7 h
^{128}Sb	9,0 h	1,5 h	40,4 h
^{131}Sb	23,0 min	19,0 min	1,9 h
^{134}Te	41,8 min	19,0 min	3,9 h
^{135}I	6,6 h	19,0 min	38,9 h

TABLEAU G.4 – Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ pour l'échantillon d'UA.

PF ₁	PF ₂	E ₁ (keV)	E ₂ (keV)	A ₁ (coups)	A ₂ (coups)	R'	α	α_{min}	α_{max}
^{87}Kr	^{128}Sb	402,6	754,0	250860 ± 1360	141414 ± 802	8,42 ± 1,15	0,00	-0,01	0,02
^{88}Kr	^{128}Sb	2392,1	754,0	400897 ± 659	141414 ± 802	10,94 ± 1,43	0,00	-0,01	0,01
^{92}Sr	^{128}Sb	1383,9	754,0	2317890 ± 1589	141414 ± 802	19,36 ± 2,36	0,00	-0,01	0,01
^{128}Sb	^{131}Sb	754,0	943,4	141414 ± 802	29222 ± 394	36,0 ± 4,89	-0,65	-0,65	-0,65
^{128}Sb	^{134}Te	754,0	767,2	141414 ± 802	448907 ± 1026	0,09 ± 0,01	0,16	0,12	0,19
^{128}Sb	^{135}I	754,0	1260,4	141414 ± 802	1282530 ± 1251	0,03 ± 0,004	-0,01	0,00	-0,02

Pour les couples $^{87}\text{Kr}/^{128}\text{Sb}$, $^{88}\text{Kr}/^{128}\text{Sb}$, $^{92}\text{Sr}/^{128}\text{Sb}$ et $^{128}\text{Sb}/^{135}\text{I}$, les valeurs obtenues pour la fraction massique de ^{239}Pu sont très proches de zéro. La différenciation $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ est très peu sensible pour les faibles enrichissements en ^{239}Pu , comme constaté sur la Figure G.2. Le couple $^{128}\text{Sb}/^{131}\text{Sb}$ n'est pas utilisable en l'état, il fournit une valeur de α sans signification, à -0,65. Une hypothèse permettant d'expliquer ce résultat est la mauvaise estimation des aires nettes des pics du ^{131}Sb . La même remarque peut être effectuée pour le couple $^{128}\text{Sb}/^{134}\text{Te}$ qui fournit une valeur d'enrichissement en ^{239}Pu à 0,16. De nouvelles mesures devront être effectuées pour confirmer ces hypothèses.

Annexe H

Différenciation dans la matrice en béton pour le cas de l'échantillon d'UA

Cette annexe fait référence à la Section 4.3.2.1. Elle propose de lister tous les résultats d'enrichissements obtenus pour l'étude des ratios de raies dans le cas de l'échantillon d'UA situé derrière 7,2 cm de béton dans la matrice, y compris ceux donnant des valeurs erronées, cas que nous tenterons d'expliquer. Pour rappel, les couples de produits de photofission les plus efficaces pour la différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ sont $^{84}\text{Br}/^{105}\text{Ru}$, $^{105}\text{Ru}/^{128}\text{Sn}$, $^{87}\text{Kr}/^{105}\text{Ru}$, $^{84}\text{Br}/^{104}\text{Tc}$, $^{104}\text{Tc}/^{128}\text{Sn}$ et $^{87}\text{Kr}/^{104}\text{Tc}$.

Les spectres étudiés sont ceux enregistrés pendant 1,3 h après 2 h d'irradiation et 44,9 min de refroidissement (dans la position 2 de la matrice, cf. Figure 4.3). Les surfaces nettes de pics pour les rayonnements gamma émis par ces produits de photofission sont estimées avec le logiciel Genie2000 et reportées dans le Tableau H.1. Les enrichissements obtenus suite à l'analyse des ratios de raies mesurés sont disponibles dans le Tableau H.2. Les ratios reportés dans le corps du manuscrit sont surlignés en vert.

TABLEAU H.1 – Surfaces nettes des pics de rayonnements gamma retardés étudiés pour la différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ de l'échantillon d'UA dans la matrice en béton.

Produit de photofission	$T_{1/2}$	E (keV)	Surface nette
^{84}Br	31,7 min	1897,6	1969 ± 144
		2484,1	1192 ± 112
		3927,5	981 ± 73
		3365,8	1251 ± 60
		3235,3	243 ± 75
^{87}Kr	1,3 h	402,6	11326 ± 398
		2554,8	5595 ± 160
		2558,1	2117 ± 95
		2011,9	1699 ± 96
^{104}Tc	18,3 min	358,0	6150 ± 432
		535,1	2005 ± 337
		893,1	14350 ± 1128
		1596,7	6352 ± 144
		1157,4	3105 ± 217
		2123,8	1652 ± 93
^{105}Ru	4,4 h	724,3	25588 ± 1571
		676,4	25679 ± 354
		469,4	5647 ± 599
^{128}Sn	59,1 min	482,4	5084 ± 372

TABLEAU H.2 – Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ pour l'échantillon d'UA derrière 8 cm de béton.

PF ₁	PF ₂	E ₁ (keV)	E ₂ (keV)	A ₁ (coups)	A ₂ (coups)	R'	α	α _{min}	α _{max}
⁸⁴ Br	¹⁰⁵ Ru	1897,6	724,3	1969 ± 144	25588 ± 1571	0,33 ± 0,06	-0,03	-0,11	0,04
		1897,6	676,4	1969 ± 144	25679 ± 354	0,11 ± 0,02	-0,30	-0,32	-0,27
		1897,6	469,4	1969 ± 144	5647 ± 599	0,54 ± 0,11	0,19	0,06	0,32
		2484,1	724,3	1192 ± 112	25588 ± 1571	0,48 ± 0,09	0,13	0,03	0,23
		2484,1	676,4	1192 ± 112	25679 ± 354	0,16 ± 0,03	-0,24	-0,27	-0,20
		2484,1	469,4	1192 ± 112	5647 ± 599	0,77 ± 0,17	0,44	0,27	0,61
		3927,5	724,3	981 ± 73	25588 ± 1571	0,49 ± 0,09	0,14	0,04	0,25
		3927,5	676,4	981 ± 73	25679 ± 354	0,16 ± 0,03	-0,23	-0,27	-0,20
		3927,5	469,4	981 ± 73	5647 ± 599	0,79 ± 0,17	0,46	0,29	0,63
		3365,8	724,3	1251 ± 60	25588 ± 1571	1,35 ± 0,28	1,01	0,75	1,26
		3365,8	676,4	1251 ± 60	25679 ± 354	0,44 ± 0,09	0,09	-0,01	0,19
		3365,8	469,4	1251 ± 60	5647 ± 599	2,17 ± 0,49	1,72	1,31	2,09
3235,3	724,3	243 ± 75	25588 ± 1571	0,36 ± 0,14	0,00	-0,16	0,15		
3235,3	676,4	243 ± 75	25679 ± 354	0,12 ± 0,04	-0,28	-0,34	-0,23		
3235,3	469,4	243 ± 75	5647 ± 599	0,58 ± 0,22	0,24	-0,01	0,48		
¹⁰⁵ Ru	¹²⁸ Sn	724,3	482,4	25588 ± 1571	5084 ± 372	8,18 ± 1,46	-0,18	-0,22	-0,12
		676,4	482,4	25679 ± 354	5084 ± 372	24,95 ± 5,01	-0,35	-0,37	-0,33
		469,4	482,4	5647 ± 599	5084 ± 372	5,09 ± 1,02	-0,02	-0,09	0,07
⁸⁷ Kr	¹⁰⁵ Ru	402,6	724,3	11326 ± 398	25588 ± 1571	0,31 ± 0,04	-0,25	-0,28	-0,22
		402,6	676,4	11326 ± 398	25679 ± 354	0,10 ± 0,01	-0,39	-0,40	-0,38
		402,6	469,4	11326 ± 398	5647 ± 599	0,49 ± 0,08	-0,12	-0,18	-0,07
		2554,8	724,3	5595 ± 160	25588 ± 1571	0,87 ± 0,12	0,12	0,04	0,19
		2554,8	676,4	5595 ± 160	25679 ± 354	0,29 ± 0,04	-0,26	-0,29	-0,24
		2554,8	469,4	5595 ± 160	5647 ± 599	1,40 ± 0,23	0,44	0,30	0,58
		2558,1	724,3	2117 ± 95	25588 ± 1571	0,78 ± 0,12	0,06	-0,01	0,13
		2558,1	676,4	2117 ± 95	25679 ± 354	0,25 ± 0,04	-0,28	-0,31	-0,26
		2558,1	469,4	2117 ± 95	5647 ± 599	1,25 ± 0,22	0,35	0,22	0,48
		2011,9	724,3	1699 ± 96	25588 ± 1571	0,78 ± 0,11	0,06	-0,01	0,13
2011,9	676,4	1699 ± 96	25679 ± 354	0,26 ± 0,03	-0,28	-0,31	-0,26		
2011,9	469,4	1699 ± 96	5647 ± 599	1,26 ± 0,21	0,36	0,23	0,48		
⁸⁴ Br	¹⁰⁴ Tc	1897,6	358,0	1969 ± 144	6150 ± 432	0,65 ± 0,13	0,64	0,42	0,86
		1897,6	535,1	1969 ± 144	2005 ± 337	0,35 ± 0,09	0,13	-0,01	0,28
		1897,6	893,1	1969 ± 144	14350 ± 1128	0,04 ± 0,01	-0,37	-0,38	-0,36
		1897,6	1596,7	1969 ± 144	6352 ± 144	0,03 ± 0,01	-0,38	-0,39	-0,37
		1897,6	1157,4	1969 ± 144	3105 ± 217	0,05 ± 0,01	-0,36	-0,37	-0,34
		1897,6	2123,8	1969 ± 144	1652 ± 93	0,06 ± 0,01	-0,33	-0,35	-0,31
		2484,1	358,0	1192 ± 112	6150 ± 432	0,94 ± 0,19	1,13	0,81	1,46
		2484,1	535,1	1192 ± 112	2005 ± 337	0,50 ± 0,13	0,39	0,17	0,61
		2484,1	893,1	1192 ± 112	14350 ± 1128	0,05 ± 0,01	-0,35	-0,37	-0,33
		2484,1	1596,7	1192 ± 112	6352 ± 144	0,05 ± 0,01	-0,35	-0,37	-0,34
		2484,1	1157,4	1192 ± 112	3105 ± 217	0,07 ± 0,01	-0,32	-0,35	-0,30
		2484,1	2123,8	1192 ± 112	1652 ± 93	0,09 ± 0,02	-0,29	-0,32	-0,26
		3927,5	358,0	981 ± 73	6150 ± 432	0,96 ± 0,19	1,18	0,85	1,51
		3927,5	535,1	981 ± 73	2005 ± 337	0,51 ± 0,13	0,41	0,19	0,63
		3927,5	893,1	981 ± 73	14350 ± 1128	0,05 ± 0,01	-0,35	-0,36	-0,33
		3927,5	1596,7	981 ± 73	6352 ± 144	0,05 ± 0,01	-0,35	-0,37	-0,34
		3927,5	1157,4	981 ± 73	3105 ± 217	0,07 ± 0,01	-0,32	-0,34	-0,30
		3927,5	2123,8	981 ± 73	1652 ± 93	0,09 ± 0,02	-0,28	-0,31	-0,25
		3365,8	358,0	1251 ± 60	6150 ± 432	2,63 ± 0,56	4,41	3,26	5,63
		3365,8	535,1	1251 ± 60	2005 ± 337	1,41 ± 0,38	1,98	1,29	2,70
		3365,8	893,1	1251 ± 60	14350 ± 1128	0,14 ± 0,03	-0,20	-0,25	-0,14
		3365,8	1596,7	1251 ± 60	6352 ± 144	0,13 ± 0,03	-0,22	-0,27	-0,17
		3365,8	1157,4	1251 ± 60	3105 ± 217	0,19 ± 0,04	-0,13	-0,20	-0,06
3365,8	2123,8	1251 ± 60	1652 ± 93	0,25 ± 0,06	-0,03	-0,12	0,06		
3235,3	358,0	243 ± 75	6150 ± 432	0,70 ± 0,27	0,73	0,28	1,20		
3235,3	535,1	243 ± 75	2005 ± 337	0,38 ± 0,16	0,18	-0,07	0,44		
3235,3	893,1	243 ± 75	14350 ± 1128	0,04 ± 0,02	-0,37	-0,39	-0,34		

⁸⁴ Br	¹⁰⁴ Tc	3235,3	1596,7	243 ± 75	6352 ± 144	0,03 ± 0,01	-0,37	-0,39	-0,35
		3235,3	1157,4	243 ± 75	3105 ± 217	0,05 ± 0,02	-0,35	-0,38	-0,32
		3235,3	2123,8	243 ± 75	1652 ± 93	0,07 ± 0,03	-0,32	-0,36	-0,28
¹⁰⁴ Tc	¹²⁸ Sn	358,0	482,4	6150 ± 432	5084 ± 372	4,19 ± 0,77	0,25	0,14	0,42
		535,1	482,4	2005 ± 337	5084 ± 372	7,84 ± 1,96	-0,07	-0,15	0,05
		893,1	482,4	14350 ± 1128	5084 ± 372	77,25 ± 16,61	-0,41	-0,41	-0,40
		1596,7	482,4	6352 ± 144	5084 ± 372	84,97 ± 16,32	-0,41	-0,41	-0,40
		1157,4	482,4	3105 ± 217	5084 ± 372	59,47 ± 12,30	-0,39	-0,40	-0,38
		2123,8	482,4	1652 ± 93	5084 ± 372	44,38 ± 8,73	-0,38	-0,39	-0,36
⁸⁷ Kr	¹⁰⁴ Tc	402,6	358,0	11326 ± 398	6150 ± 432	0,60 ± 0,09	0,09	0,01	0,17
		402,6	535,1	11326 ± 398	2005 ± 337	0,32 ± 0,07	-0,17	-0,23	-0,10
		402,6	893,1	11326 ± 398	14350 ± 1128	0,03 ± 0,01	-0,43	-0,43	-0,42
		402,6	1596,7	11326 ± 398	6352 ± 144	0,03 ± 0,00	-0,43	-0,44	-0,43
		402,6	1157,4	11326 ± 398	3105 ± 217	0,04 ± 0,01	-0,42	-0,43	-0,41
		402,6	2123,8	11326 ± 398	1652 ± 93	0,06 ± 0,01	-0,41	-0,42	-0,40
		2554,8	358,0	5595 ± 160	6150 ± 432	1,70 ± 0,25	1,16	0,91	1,41
		2554,8	535,1	5595 ± 160	2005 ± 337	0,91 ± 0,20	0,39	0,19	0,58
		2554,8	893,1	5595 ± 160	14350 ± 1128	0,09 ± 0,02	-0,37	-0,39	-0,36
		2554,8	1596,7	5595 ± 160	6352 ± 144	0,08 ± 0,01	-0,38	-0,39	-0,37
		2554,8	1157,4	5595 ± 160	3105 ± 217	0,12 ± 0,02	-0,35	-0,37	-0,33
		2554,8	2123,8	5595 ± 160	1652 ± 93	0,16 ± 0,03	-0,31	-0,34	-0,29
		2558,1	358,0	2117 ± 95	6150 ± 432	1,52 ± 0,24	0,97	0,74	1,21
		2558,1	535,1	2117 ± 95	2005 ± 337	0,81 ± 0,19	0,29	0,12	0,47
		2558,1	893,1	2117 ± 95	14350 ± 1128	0,08 ± 0,02	-0,38	-0,40	-0,37
		2558,1	1596,7	2117 ± 95	6352 ± 144	0,07 ± 0,01	-0,39	-0,40	-0,38
		2558,1	1157,4	2117 ± 95	3105 ± 217	0,11 ± 0,02	-0,36	-0,38	-0,34
		2558,1	2123,8	2117 ± 95	1652 ± 93	0,14 ± 0,02	-0,33	-0,35	-0,31
		2011,9	358,0	1699 ± 96	6150 ± 432	1,53 ± 0,23	0,98	0,76	1,22
		2011,9	535,1	1699 ± 96	2005 ± 337	0,82 ± 0,19	0,30	0,12	0,47
2011,9	893,1	1699 ± 96	14350 ± 1128	0,08 ± 0,02	-0,38	-0,40	-0,37		
2011,9	1596,7	1699 ± 96	6352 ± 144	0,08 ± 0,01	-0,39	-0,40	-0,38		
2011,9	1157,4	1699 ± 96	3105 ± 217	0,11 ± 0,02	-0,36	-0,38	-0,34		
2011,9	2123,8	1699 ± 96	1652 ± 93	0,14 ± 0,02	-0,33	-0,35	-0,31		

La plupart des ratios considérés ne donnent pas une valeur représentative de α . On propose de passer en revue les raisons pour lesquelles certains ratios ne peuvent être utilisés.

- Tout d'abord, la raie à 3365,8 keV du ⁸⁴Br rentre en interférence avec celle à 3369,8 keV du ⁵⁶Mn, un produit d'activation. L'estimation de l'aire nette est donc entachée d'erreur. On ne peut ainsi pas utiliser de façon fiable les ratios comportant cette raie.
- Les raies du ¹⁰⁴Tc semblent toutes inutilisables en combinaison avec les raies du ⁸⁷Kr. En l'occurrence, seule la raie à 535,1 keV semble pouvoir être utilisée avec les raies à 1897,6 keV et 3235,3 keV du ⁸⁴Br et la raie à 482,4 keV du ¹²⁸Sn. S'agissant de la raie à 358,0 keV, on comprend aisément en voyant la Figure H.1 que l'estimation de son aire nette avec le logiciel Genie2000 est complexe, compte-tenu du fond Compton important dans cette région d'intérêt. La raie à 893,1 keV est quant à elle quasiment masquée par une raie beaucoup plus intense à 895 keV (voir Figure H.2). Concernant la raie à 1596,7 keV, elle est juxtaposée à une raie aux alentours de 1602 keV (voir Figure H.3), ce qui implique une forte variabilité dans l'estimation de son aire nette en fonction des bornes choisies par l'utilisateur pour la région d'intérêt. La même problématique se retrouve pour la raie à 1157,4 keV (voir Figure H.4). La raie à 2123,8 keV se situe à proximité de la raie à 2113,1 keV émise par le ⁵⁶Mn, un produit d'activation. Cette dernière étant très intense (voir Figure H.5), il est difficile d'estimer l'aire de la raie à 2123,8 keV émise par le ¹⁰⁴Tc de façon précise. Enfin, bien que la raie à 535,1 keV fasse partie de plusieurs ratios de raies donnant un résultat d'enrichissement proche de celui attendu, elle se situe dans une zone d'énergie très peuplée (*cf.* Figure H.6). L'estimation de son aire nette est donc affectée d'une incertitude significative.
- L'estimation de l'aire nette des raies à basse énergie avec Genie2000 est également complexe. Par exemple, la raie à 402,6 keV émise par le ⁸⁷Kr se trouve dans une zone où le fond Compton est très élevé (voir Figure H.7). L'intégrale du fond Compton sous le pic, d'environ 100000 coups, est approximativement 10 fois plus élevée que la surface du pic, estimée à 11000 coups. On comprend alors que l'estimation de la surface nette et de l'incertitude associée peut s'en retrouver affectée.

De plus, on constate la présence de pics à proximité, rendant parfois une déconvolution nécessaire, et l'estimation du fond Compton plus difficile. Des explications similaires peuvent être apportées concernant l'estimation erronée des aires nettes des raies à 469,4 keV du ^{105}Ru et 482,4 keV du ^{128}Sn (Figure H.8) et à 676,5 keV du ^{105}Ru (Figure H.9).

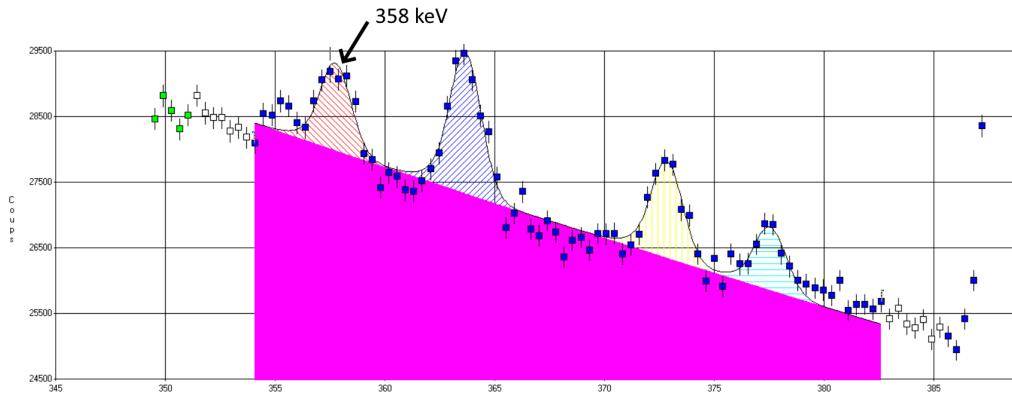


FIGURE H.1 – Raie à 358,0 keV du ^{104}Tc .

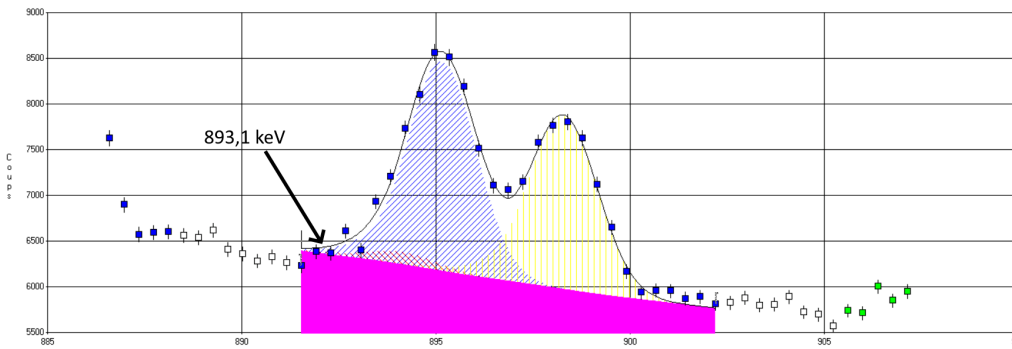


FIGURE H.2 – Raie à 893,1 keV du ^{104}Tc .

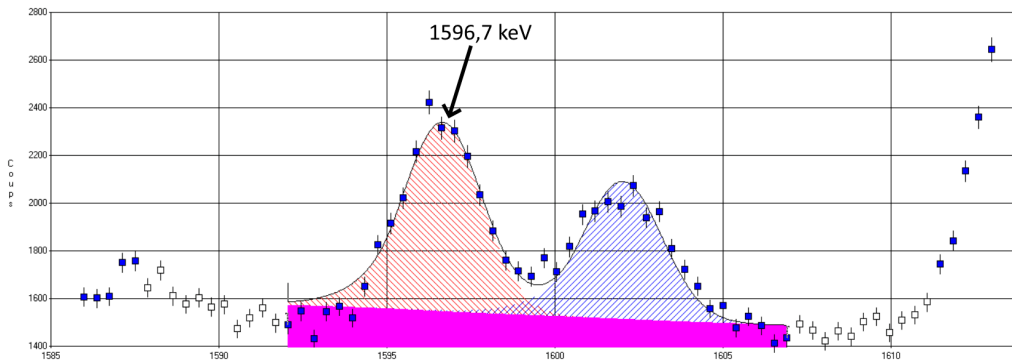


FIGURE H.3 – Raie à 1596,7 keV du ^{104}Tc .

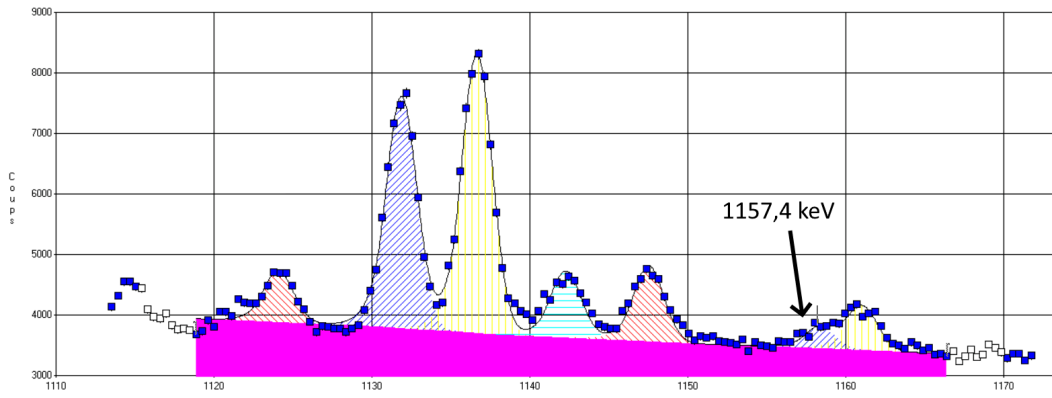


FIGURE H.4 – Raie à 1157,4 keV du ^{104}Tc .

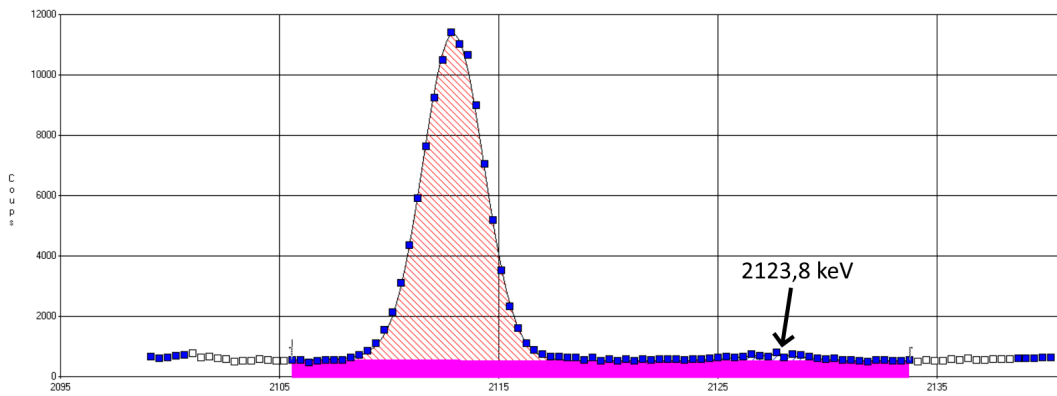


FIGURE H.5 – Raie à 2123,8 keV du ^{104}Tc .

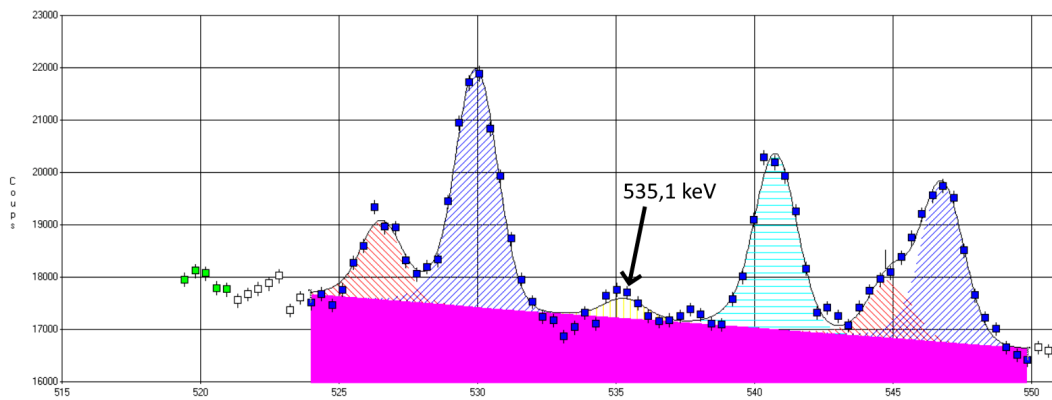


FIGURE H.6 – Raie à 535,1 keV du ^{104}Tc .

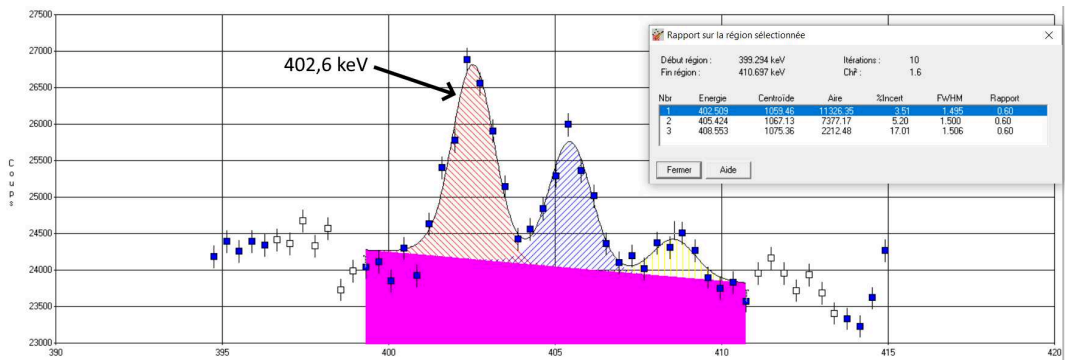


FIGURE H.7 – Raie à 402,6 keV du ^{87}Kr .

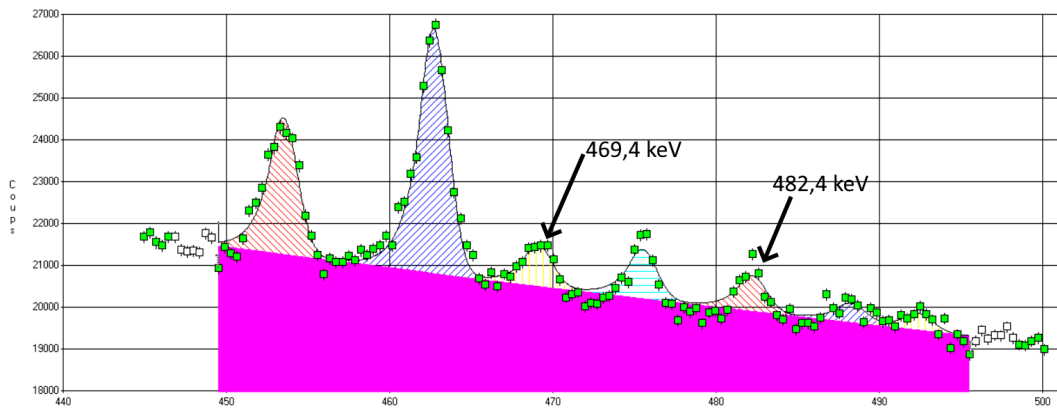


FIGURE H.8 – Raies à 469,4 keV du ^{105}Ru et à 482,4 keV du ^{128}Sn .

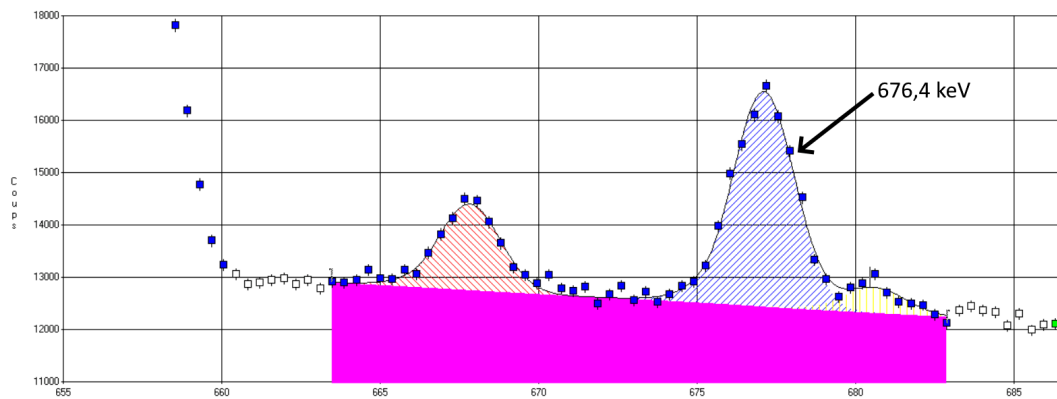


FIGURE H.9 – Raie à 676,4 keV du ^{105}Ru .

Annexe I

Différenciation dans la matrice en béton pour le cas des échantillons d'UA et d'UHE combinés

Cette annexe fait référence à la Section 4.3.2.2. Elle propose de lister tous les résultats d'enrichissements obtenus pour l'étude des ratios de raies dans le cas des échantillons d'UA et d'UHE situés derrière 7,2 cm de béton dans la matrice, y compris ceux donnant des valeurs erronées. Les spectres étudiés sont enregistrés pendant 4,8 h après 2 h d'irradiation et 5,4 min de refroidissement. Les surfaces nettes de pics pour les rayonnements gamma émis par les produits de photofission utiles à la différenciation sont reportées dans le Tableau I.1. Les enrichissements obtenus suite à l'analyse des ratios de raies mesurés sont disponibles dans le Tableau I.2. Les ratios reportés dans le corps du manuscrit sont surlignés en vert.

TABLEAU I.1 – Surfaces nettes des pics de rayonnements gamma retardés étudiés pour la différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ des échantillons d'UA et d'UHE dans la matrice en béton.

Produit de photofission	$T_{1/2}$	E (keV)	Surface nette
^{84}Br	31,7 min	881,6	8238 ± 484
		1897,6	6996 ± 593
		1015,9	4627 ± 378
		2484,1	3984 ± 105
		3927,5	3618 ± 129
		3235,3	908 ± 43
^{87}Kr	1,3 h	402,6	48420 ± 775
		2554,8	17372 ± 598
		2558,1	7157 ± 280
		2011,9	5298 ± 317
^{104}Tc	18,3 min	358,0	36921 ± 2230
		535,1	4896 ± 1075
		1596,7	33309 ± 829
		1157,4	11191 ± 429
^{105}Ru	4,4 h	724,3	88584 ± 2356
		676,4	68805 ± 2959
		469,4	25581 ± 982
^{128}Sn	59,1 min	482,4	15436 ± 684

TABLEAU I.2 – Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ pour les échantillons d'UA et d'UHE derrière 8 cm de béton.

PF ₁	PF ₂	E ₁ (keV)	E ₂ (keV)	A ₁ (coups)	A ₂ (coups)	R'	α	α _{min}	α _{max}
⁸⁴ Br	¹⁰⁵ Ru	881,6	724,3	8238 ± 484	88584 ± 2356	0,10 ± 0,01	-0,30	-0,32	-0,28
		881,6	676,4	8238 ± 484	68805 ± 2959	0,04 ± 0,01	-0,37	-0,38	-0,37
		881,6	469,4	8238 ± 484	25581 ± 982	0,13 ± 0,02	-0,27	-0,30	-0,25
		1897,6	724,3	6996 ± 593	88584 ± 2356	0,27 ± 0,05	-0,11	-0,17	-0,05
		1897,6	676,4	6996 ± 593	68805 ± 2959	0,11 ± 0,02	-0,29	-0,32	-0,27
		1897,6	469,4	6996 ± 593	25581 ± 982	0,33 ± 0,06	-0,04	-0,11	0,03
		1015,9	724,3	4627 ± 378	88584 ± 2356	0,39 ± 0,07	0,04	-0,05	0,12
		1015,9	676,4	4627 ± 378	68805 ± 2959	0,17 ± 0,03	-0,23	-0,26	-0,19
		1015,9	469,4	4627 ± 378	25581 ± 982	0,48 ± 0,09	0,14	0,03	0,23
		2484,1	724,3	3984 ± 105	88584 ± 2356	0,36 ± 0,06	0,00	-0,07	0,06
		2484,1	676,4	3984 ± 105	68805 ± 2959	0,15 ± 0,03	-0,24	-0,27	-0,21
		2484,1	469,4	3984 ± 105	25581 ± 982	0,44 ± 0,07	0,09	0,01	0,17
		3927,5	724,3	3618 ± 129	88584 ± 2356	0,41 ± 0,07	0,05	-0,03	0,13
		3927,5	676,4	3618 ± 129	68805 ± 2959	0,17 ± 0,03	-0,22	-0,26	-0,18
		3927,5	469,4	3618 ± 129	25581 ± 982	0,50 ± 0,09	0,15	0,06	0,25
3235,3	724,3	908 ± 43	88584 ± 2356	0,30 ± 0,06	-0,07	-0,14	0,01		
3235,3	676,4	908 ± 43	68805 ± 2959	0,13 ± 0,03	-0,27	-0,31	-0,24		
3235,3	469,4	908 ± 43	25581 ± 982	0,37 ± 0,08	0,01	-0,08	0,10		
¹⁰⁵ Ru	¹²⁸ Sn	724,3	482,4	88584 ± 2356	15436 ± 684	6,87 ± 1,10	-0,13	-0,17	-0,07
		676,4	482,4	68805 ± 2959	15436 ± 684	16,21 ± 2,67	-0,31	-0,33	-0,28
		469,4	482,4	25581 ± 982	15436 ± 684	5,59 ± 0,92	-0,06	-0,11	0,01
⁸⁷ Kr	¹⁰⁵ Ru	402,6	724,3	48420 ± 775	88584 ± 2356	0,46 ± 0,06	-0,15	-0,18	-0,11
		402,6	676,4	48420 ± 775	68805 ± 2959	0,20 ± 0,03	-0,32	-0,34	-0,31
		402,6	469,4	48420 ± 775	25581 ± 982	0,57 ± 0,07	-0,08	-0,12	-0,03
		2554,8	724,3	17372 ± 598	88584 ± 2356	0,95 ± 0,12	0,17	0,09	0,24
		2554,8	676,4	17372 ± 598	68805 ± 2959	0,40 ± 0,05	-0,18	-0,22	-0,15
		2554,8	469,4	17372 ± 598	25581 ± 982	1,17 ± 0,16	0,30	0,21	0,40
		2558,1	724,3	7157 ± 280	88584 ± 2356	0,92 ± 0,13	0,15	0,07	0,23
		2558,1	676,4	7157 ± 280	68805 ± 2959	0,39 ± 0,06	-0,19	-0,23	-0,15
		2558,1	469,4	7157 ± 280	25581 ± 982	1,13 ± 0,16	0,28	0,18	0,38
		2011,9	724,3	5298 ± 317	88584 ± 2356	0,86 ± 0,12	0,11	0,04	0,18
2011,9	676,4	5298 ± 317	68805 ± 2959	0,36 ± 0,05	-0,21	-0,24	-0,18		
2011,9	469,4	5298 ± 317	25581 ± 982	1,05 ± 0,15	0,23	0,14	0,32		
⁸⁴ Br	¹⁰⁴ Tc	881,6	358,0	8238 ± 484	36921 ± 2230	0,25 ± 0,04	-0,03	-0,10	0,03
		881,6	535,1	8238 ± 484	4896 ± 1075	0,32 ± 0,09	-0,09	-0,05	0,24
		881,6	1596,7	8238 ± 484	33309 ± 829	0,01 ± 0,00	-0,41	-0,41	-0,40
		881,6	1157,4	8238 ± 484	11191 ± 429	0,03 ± 0,01	-0,38	-0,39	-0,37
		1897,6	358,0	6996 ± 593	36921 ± 2230	0,62 ± 0,13	0,60	0,39	0,81
		1897,6	535,1	6996 ± 593	4896 ± 1075	0,82 ± 0,25	0,93	0,51	1,37
		1897,6	1596,7	6996 ± 593	33309 ± 829	0,04 ± 0,01	-0,37	-0,38	-0,36
		1897,6	1157,4	6996 ± 593	11191 ± 429	0,07 ± 0,02	-0,31	-0,34	-0,29
		1015,9	358,0	4627 ± 378	36921 ± 2230	0,93 ± 0,18	1,11	0,81	1,43
		1015,9	535,1	4627 ± 378	4896 ± 1075	1,22 ± 0,36	1,63	1,00	2,29
		1015,9	1596,7	4627 ± 378	33309 ± 829	0,05 ± 0,01	-0,34	-0,36	-0,33
		1015,9	1157,4	4627 ± 378	11191 ± 429	0,11 ± 0,02	-0,25	-0,29	-0,22
		2484,1	358,0	3984 ± 105	36921 ± 2230	0,85 ± 0,15	0,98	0,72	1,24
		2484,1	535,1	3984 ± 105	4896 ± 1075	1,11 ± 0,32	1,45	0,89	2,02
		2484,1	1596,7	3984 ± 105	33309 ± 829	0,05 ± 0,01	-0,35	-0,37	-0,34
		2484,1	1157,4	3984 ± 105	11191 ± 429	0,10 ± 0,02	-0,27	-0,30	-0,24
		3927,5	358,0	3618 ± 129	36921 ± 2230	0,96 ± 0,17	1,17	0,87	1,48
		3927,5	535,1	3618 ± 129	4896 ± 1075	1,26 ± 0,36	1,71	1,07	2,38
		3927,5	1596,7	3618 ± 129	33309 ± 829	0,05 ± 0,01	-0,34	-0,36	-0,33
		3927,5	1157,4	3618 ± 129	11191 ± 429	0,11 ± 0,02	-0,25	-0,28	-0,21
3235,3	358,0	908 ± 43	36921 ± 2230	0,71 ± 0,16	0,75	0,48	1,02		
3235,3	535,1	908 ± 43	4896 ± 1075	0,94 ± 0,29	1,14	0,63	1,66		
3235,3	1596,7	908 ± 43	33309 ± 829	0,04 ± 0,01	-0,36	-0,38	-0,35		
3235,3	1157,4	908 ± 43	11191 ± 429	0,08 ± 0,02	-0,29	-0,33	-0,26		

^{104}Tc	^{128}Sn	358,0	482,4	36921 ± 2230	15436 ± 684	$4,53 \pm 0,78$	0,20	0,11	0,34
		535,1	482,4	4896 ± 1075	15436 ± 684	$3,45 \pm 0,97$	0,41	0,22	0,76
		1596,7	482,4	33309 ± 829	15436 ± 684	$80,26 \pm 14,71$	-0,41	-0,41	-0,40
		1157,4	482,4	11191 ± 429	15436 ± 684	$38,61 \pm 7,33$	-0,37	-0,38	-0,35
^{87}Kr	^{104}Tc	402,6	358,0	48420 ± 775	36921 ± 2230	$0,76 \pm 0,10$	0,25	0,15	0,35
		402,6	535,1	48420 ± 775	4896 ± 1075	$1,00 \pm 0,26$	0,48	0,23	0,73
		402,6	1596,7	48420 ± 775	33309 ± 829	$0,04 \pm 0,01$	-0,42	-0,42	-0,41
		402,6	1157,4	48420 ± 775	11191 ± 429	$0,09 \pm 0,01$	-0,38	-0,39	-0,36
		2554,8	358,0	17372 ± 598	36921 ± 2230	$1,57 \pm 0,23$	1,03	0,81	1,26
		2554,8	535,1	17372 ± 598	4896 ± 1075	$2,07 \pm 0,55$	1,53	0,98	2,10
		2554,8	1596,7	17372 ± 598	33309 ± 829	$0,09 \pm 0,01$	-0,38	-0,39	-0,36
		2554,8	1157,4	17372 ± 598	11191 ± 429	$0,18 \pm 0,03$	-0,29	-0,32	-0,26
		2558,1	358,0	7157 ± 280	36921 ± 2230	$1,53 \pm 0,23$	0,99	0,76	1,21
		2558,1	535,1	7157 ± 280	4896 ± 1075	$2,01 \pm 0,54$	1,47	0,93	2,03
		2558,1	1596,7	7157 ± 280	33309 ± 829	$0,09 \pm 0,01$	-0,38	-0,39	-0,37
		2558,1	1157,4	7157 ± 280	11191 ± 429	$0,18 \pm 0,03$	-0,30	-0,32	-0,27
		2011,9	358,0	5298 ± 317	36921 ± 2230	$1,42 \pm 0,21$	0,88	0,67	1,09
		2011,9	535,1	5298 ± 317	4896 ± 1075	$1,87 \pm 0,50$	1,33	0,83	1,84
		2011,9	1596,7	5298 ± 317	33309 ± 829	$0,08 \pm 0,01$	-0,39	-0,40	-0,37
		2011,9	1157,4	5298 ± 317	11191 ± 429	$0,17 \pm 0,03$	-0,31	-0,33	-0,28

Bien que la statistique de comptage soit meilleure dans le cas des deux échantillons d'UA et d'UHE combinés (temps de refroidissement plus court et temps de comptage plus élevé), certaines raies ne sont pas exploitables :

- De la même façon que pour le cas de l'UA seul (voir Annexe H, de la Figure H.1 à la Figure H.6), les raies du ^{104}Tc ne sont pas exploitables.
- La raie à 881,6 keV émise par le ^{84}Br est incluse dans la raie à 884,1 keV de l' ^{134}I qui est très intense (voir Figure I.1).
- Se référer aux explications données dans l'Annexe H pour les raies non mentionnées ici.

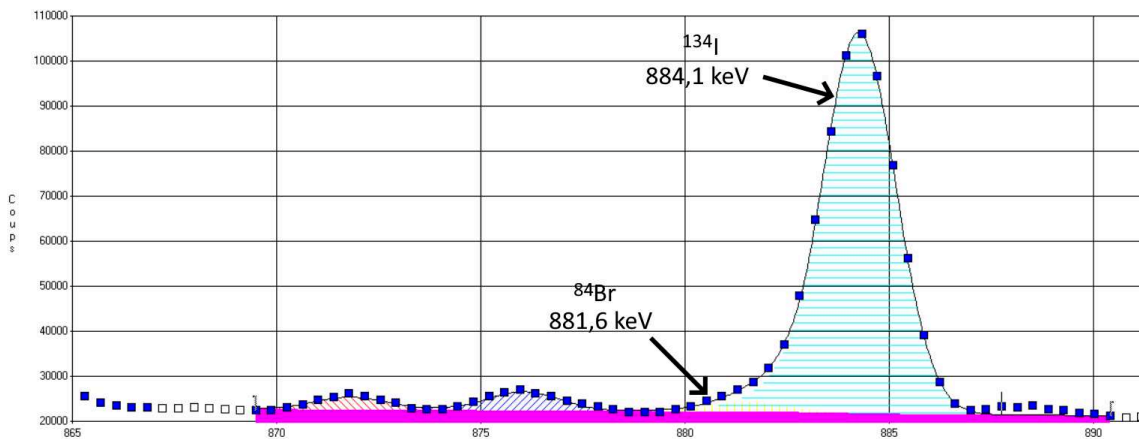


FIGURE I.1 – Raies à 881,6 keV du ^{84}Br et à 884,1 keV de l' ^{134}I .

Annexe J

Différenciation dans la matrice en béton pour le cas de l'échantillon d'UHE

Cette annexe fait référence à la Section 4.3.2.3. Elle propose de lister tous les résultats d'enrichissements obtenus pour l'étude des ratios de raies dans le cas de l'échantillon d'UHE situé derrière 7,2 cm de béton dans la matrice, y compris ceux donnant des valeurs erronées. Les spectres étudiés sont ceux enregistrés pendant 20,4 h après 2 h d'irradiation et 43,6 min de refroidissement (dans la position 2 de la matrice, *cf.* Figure 4.3). Les surfaces nettes de pics pour les rayonnements gamma émis par les produits de photofission utiles à la différenciation sont reportées dans le Tableau J.1. Les enrichissements obtenus suite à l'analyse des ratios de raies mesurés sont disponibles dans le Tableau J.2. Les ratios reportés dans le corps du manuscrit sont surlignés en vert.

TABLEAU J.1 – Surfaces nettes des pics de rayonnements gamma retardés étudiés pour la différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ de l'échantillon d'UHE dans la matrice en béton.

Produit de photofission	$T_{1/2}$	E (keV)	Surface nette
^{84}Br	31,7 min	881,6	2944 ± 492
		1897,6	1735 ± 152
		2484,1	567 ± 75
		3927,5	451 ± 62
^{87}Kr	1,3 h	402,6	16953 ± 680
		2554,8	3175 ± 100
		2558,1	1276 ± 92
		2011,9	1916 ± 126
^{104}Tc	18,3 min	1596,7	6352 ± 144
^{105}Ru	4,4 h	724,3	42824 ± 1340
		676,4	6964 ± 485
		469,4	4065 ± 1026
^{128}Sn	59,1 min	482,4	5258 ± 629

TABLEAU J.2 – Résultats de la méthode de différenciation $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ pour l'échantillon d'UHE derrière 7 cm de béton.

PF ₁	PF ₂	E ₁ (keV)	E ₂ (keV)	A ₁ (coups)	A ₂ (coups)	R'	α	α_{\min}	α_{\max}
^{84}Br	^{105}Ru	881,6	724,3	2944 ± 492	42824 ± 1340	0,42 ± 0,09	0,07	-0,03	0,16
		881,6	676,4	2944 ± 492	6964 ± 485	0,86 ± 0,19	0,53	0,33	0,72
		881,6	469,4	2944 ± 492	4065 ± 1026	1,63 ± 0,54	1,27	0,77	1,72
		1897,6	724,3	1735 ± 152	42824 ± 1340	0,78 ± 0,15	0,46	0,30	0,61
		1897,6	676,4	1735 ± 152	6964 ± 485	1,60 ± 0,33	1,24	0,94	1,52
		1897,6	469,4	1735 ± 152	4065 ± 1026	3,04 ± 0,96	2,36	1,64	2,98
		2484,1	724,3	567 ± 75	42824 ± 1340	0,62 ± 0,13	0,28	0,14	0,42
		2484,1	676,4	567 ± 75	6964 ± 485	1,26 ± 0,28	0,92	0,66	1,18
		2484,1	469,4	567 ± 75	4065 ± 1026	2,39 ± 0,78	1,89	1,25	2,46
		3927,5	724,3	451 ± 62	42824 ± 1340	0,62 ± 0,13	0,29	0,14	0,43
3927,5	676,4	451 ± 62	6964 ± 485	1,27 ± 0,29	0,94	0,66	1,20		
3927,5	469,4	451 ± 62	4065 ± 1026	2,42 ± 0,80	1,91	1,25	2,49		
^{105}Ru	^{128}Sn	724,3	482,4	42824 ± 1340	5258 ± 629	4,41 ± 0,86	0,04	-0,04	0,15
		676,4	482,4	6964 ± 485	5258 ± 629	2,17 ± 0,69	0,49	0,28	0,88
		469,4	482,4	4065 ± 1026	5258 ± 629	1,14 ± 0,36	1,21	0,86	1,83
^{87}Kr	^{105}Ru	402,6	724,3	16953 ± 680	42824 ± 1340	0,69 ± 0,09	0,00	-0,05	0,06
		402,6	676,4	16953 ± 680	6964 ± 485	1,40 ± 0,20	0,44	0,32	0,56
		402,6	469,4	16953 ± 680	4065 ± 1026	2,67 ± 0,75	1,14	0,74	1,51
		2554,8	724,3	3175 ± 100	42824 ± 1340	0,84 ± 0,11	0,10	0,03	0,17
		2554,8	676,4	3175 ± 100	6964 ± 485	1,72 ± 0,25	0,62	0,48	0,77
		2554,8	469,4	3175 ± 100	4065 ± 1026	3,26 ± 0,92	1,44	0,97	1,86
		2558,1	724,3	1276 ± 92	42824 ± 1340	0,80 ± 0,12	0,07	0,00	0,15
		2558,1	676,4	1276 ± 92	6964 ± 485	1,62 ± 0,27	0,57	0,42	0,72
		2558,1	469,4	1276 ± 92	4065 ± 1026	3,09 ± 0,91	1,35	0,89	1,78
		2011,9	724,3	1916 ± 126	42824 ± 1340	1,49 ± 0,21	0,49	0,37	0,61
2011,9	676,4	1916 ± 126	6964 ± 485	3,03 ± 0,47	1,32	1,08	1,55		
2011,9	469,4	1916 ± 126	4065 ± 1026	5,76 ± 1,66	2,50	1,82	3,09		
^{84}Br	^{104}Tc	881,6	1596,7	2944 ± 492	6352 ± 144	0,00	-0,42	-0,42	-0,42
		1897,6	1596,7	1735 ± 152	6352 ± 144	0,01	-0,41	-0,42	-0,41
		2484,1	1596,7	567 ± 75	6352 ± 144	0,01	-0,42	-0,42	-0,41
		3927,5	1596,7	451 ± 62	6352 ± 144	0,01	-0,42	-0,42	-0,41
^{104}Tc	^{128}Sn	1596,7	482,4	6352 ± 144	5258 ± 629	382 ± 92	-0,43	-0,44	-0,43
^{87}Kr	^{104}Tc	402,6	1596,7	16953 ± 680	6352 ± 144	0,01	-0,45	-0,45	-0,45
		2554,8	1596,7	3175 ± 100	6352 ± 144	0,01	-0,45	-0,45	-0,45
		2558,1	1596,7	1276 ± 92	6352 ± 144	0,01	-0,45	-0,45	-0,45
		2011,9	1596,7	1916 ± 126	6352 ± 144	0,02	-0,44	-0,45	-0,44

La masse de l'échantillon d'UHE étant environ 20 fois plus faible que celui d'UA, la statistique de comptage s'en trouve très affectée. Pour les mêmes raisons que celles évoquées dans l'Annexe H et l'Annexe I, certaines raies ne sont pas exploitables.

Annexe K

Efficacité de détection en fonction de la profondeur dans la matrice de colis 870 L pour les différentes raies de gamma retardés étudiées

Profondeur (cm)	1383,9 keV	2484,1 keV	2554,8 keV/ 2558,1 keV	2570,1 keV
5	$(6,60 \pm 0,46) \times 10^{-5}$	$(5,31 \pm 0,37) \times 10^{-5}$	$(5,23 \pm 0,37) \times 10^{-5}$	$(5,22 \pm 0,36) \times 10^{-5}$
10	$(2,91 \pm 0,20) \times 10^{-5}$	$(2,77 \pm 0,19) \times 10^{-5}$	$(2,88 \pm 0,20) \times 10^{-5}$	$(2,75 \pm 0,19) \times 10^{-5}$
15	$(1,70 \pm 0,12) \times 10^{-5}$	$(1,78 \pm 0,12) \times 10^{-5}$	$(1,78 \pm 0,12) \times 10^{-5}$	$(1,78 \pm 0,12) \times 10^{-5}$
20	$(1,00 \pm 0,07) \times 10^{-5}$	$(1,16 \pm 0,08) \times 10^{-5}$	$(1,15 \pm 0,08) \times 10^{-5}$	$(1,16 \pm 0,08) \times 10^{-5}$
25	$(5,96 \pm 0,42) \times 10^{-6}$	$(7,60 \pm 0,53) \times 10^{-6}$	$(7,63 \pm 0,53) \times 10^{-6}$	$(7,64 \pm 0,53) \times 10^{-6}$
30	$(3,58 \pm 0,25) \times 10^{-6}$	$(5,02 \pm 0,35) \times 10^{-6}$	$(5,06 \pm 0,35) \times 10^{-6}$	$(5,07 \pm 0,36) \times 10^{-6}$
35	$(2,16 \pm 0,15) \times 10^{-6}$	$(3,35 \pm 0,23) \times 10^{-6}$	$(3,39 \pm 0,24) \times 10^{-6}$	$(3,39 \pm 0,24) \times 10^{-6}$
40	$(1,32 \pm 0,09) \times 10^{-6}$	$(2,24 \pm 0,16) \times 10^{-6}$	$(2,28 \pm 0,16) \times 10^{-6}$	$(2,28 \pm 0,16) \times 10^{-6}$
45	$(8,09 \pm 0,57) \times 10^{-7}$	$(1,51 \pm 0,11) \times 10^{-6}$	$(1,54 \pm 0,11) \times 10^{-6}$	$(1,55 \pm 0,11) \times 10^{-6}$
50	$(4,99 \pm 0,35) \times 10^{-7}$	$(1,02 \pm 0,07) \times 10^{-6}$	$(1,05 \pm 0,07) \times 10^{-6}$	$(1,05 \pm 0,07) \times 10^{-6}$

Profondeur (cm)	2632,4 keV	3576,0 keV	3927,5 keV
5	$(5,16 \pm 0,36) \times 10^{-5}$	$(4,23 \pm 0,30) \times 10^{-5}$	$(3,96 \pm 0,28) \times 10^{-5}$
10	$(2,73 \pm 0,19) \times 10^{-5}$	$(2,39 \pm 0,17) \times 10^{-5}$	$(2,28 \pm 0,16) \times 10^{-5}$
15	$(1,77 \pm 0,12) \times 10^{-5}$	$(1,61 \pm 0,11) \times 10^{-5}$	$(1,54 \pm 0,11) \times 10^{-5}$
20	$(1,16 \pm 0,08) \times 10^{-5}$	$(1,09 \pm 0,08) \times 10^{-5}$	$(1,06 \pm 0,07) \times 10^{-5}$
25	$(7,66 \pm 0,54) \times 10^{-6}$	$(7,47 \pm 0,52) \times 10^{-6}$	$(7,30 \pm 0,51) \times 10^{-6}$
30	$(5,10 \pm 0,36) \times 10^{-6}$	$(5,16 \pm 0,36) \times 10^{-6}$	$(5,08 \pm 0,36) \times 10^{-6}$
35	$(3,42 \pm 0,24) \times 10^{-6}$	$(3,58 \pm 0,25) \times 10^{-6}$	$(3,57 \pm 0,25) \times 10^{-6}$
40	$(2,31 \pm 0,16) \times 10^{-6}$	$(2,51 \pm 0,18) \times 10^{-6}$	$(2,52 \pm 0,18) \times 10^{-6}$
45	$(1,57 \pm 0,11) \times 10^{-6}$	$(1,76 \pm 0,12) \times 10^{-6}$	$(1,79 \pm 0,13) \times 10^{-6}$
50	$(1,08 \pm 0,08) \times 10^{-6}$	$(1,25 \pm 0,09) \times 10^{-6}$	$(1,27 \pm 0,09) \times 10^{-6}$

Bibliographie

- [1] F. CARREL, B. CHARBONNIER, R. COULON, F. LAINÉ, S. NORMAND, C. SALMON et A. SARI. Characterization of Old Nuclear Waste Packages Coupling Photon Activation Analysis and Complementary Non-Destructive Techniques. English. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 61(4) :2137-2143, 2014. ISSN : 1558-1578. DOI : 10 . 1109 / TNS . 2014 . 2304751. Conference Name : IEEE Transactions on Nuclear Science.
- [2] B. PÉROT, F. JALLU, C. PASSARD, O. GUETON, P.-G. ALLINEI, L. LOUBET, N. ESTRE, E. SIMON, C. CARASCO, C. ROURE, L. BOUCHER, H. LAMOTTE, J. COMTE, M. BERTAUX, A. LYOUSSI, P. FICHET et F. CARREL. The characterization of radioactive waste : a critical review of techniques implemented or under development at CEA, France. English. *EPJ Nuclear Sciences & Technologies*, 4 :3, 2018. ISSN : 2491-9292. DOI : 10 . 1051 / epjn / 2017033. URL : <https://www.epj-n.org/10.1051/epjn/2017033> (visité le 21/02/2022).
- [3] Chapitre II : Dispositions particulières à la gestion durable des matières et des déchets radioactifs (Articles L542-1 à L542-14) - Légifrance. URL : https://www.legifrance.gouv.fr/codes/section_lc/LEGITEXT000006074220/LEGISCTA000006159291/#LEGISCTA000006159291 (visité le 24/02/2022).
- [4] ANDRA. Inventaire national des matières et déchets radioactifs, 2018. URL : <https://inventaire.andra.fr/sites/default/files/documents/pdf/fr/andra-synthese-2018-web.pdf> (visité le 21/02/2022).
- [5] Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs - ANDRA. Français. URL : <https://www.andra.fr/> (visité le 21/02/2022).
- [6] P. CAIRON. Les supercontrôles : activités d'expertises de colis de déchets radioactifs. Français. Rapport technique, ANDRA, 2001. URL : https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/34/073/34073796.pdf (visité le 07/03/2022).
- [7] D. REILLY, N. ENSSLIN, H. SMITH et S. KREINER. *Passive nondestructive assay of nuclear materials*. English. US Department of Commerce, National Technical Information Service, Springfield, VA, 1991. ISBN : 978-0-16-032724-7. OCLC : 847336648.
- [8] G. R. GILMORE. *Practical Gamma-Ray Spectrometry*. English. John Wiley & Sons, Ltd, Chichester, UK, 2008. ISBN : 978-0-470-86196-7. DOI : 10 . 1002 / 9780470861981. URL : <http://doi.wiley.com/10.1002/9780470861981> (visité le 21/02/2022).
- [9] D. RIDIKAS, S. FERAY, M. COMETTO et F. DAMOY. Non-destructive method of characterisation of radioactive waste containers using gamma spectroscopy and Monte Carlo techniques. English. *Radiation Protection Dosimetry*, 115(1-4) :113-116, 2005. ISSN : 1742-3406, 0144-8420. DOI : 10 . 1093 / rpd / nci253. URL : <http://academic.oup.com/rpd/article/115/1-4/113/1601571/Nondestructive-method-of-characterisation-of> (visité le 21/02/2022).
- [10] T. KRINGS et E. MAUERHOFER. Reconstruction of the isotope activity content of heterogeneous nuclear waste drums. English. *Applied Radiation and Isotopes*, 70(7) :1100-1103, 2012. DOI : 10.1016/j.apradiso.2011.11.021. (Visité le 21/02/2022).
- [11] G. DAVIES, N. M. SPYROU, I. G. HUTCHINSON et J. HUDDLESTON. Applications of emission tomography in the nuclear industry. English. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 242(3) :615-619, 1986. ISSN : 0168-9002. DOI : 10 . 1016 / 0168 - 9002 (86) 90476 - 6. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0168900286904766> (visité le 21/02/2022).

- [12] T. T. THANH, H. T. K. TRANG, H. D. CHUONG, V. H. NGUYEN, L. B. TRAN, H. D. TAM et C. V. TAO. A prototype of radioactive waste drum monitor by non-destructive assays using gamma spectrometry. English. *Applied Radiation and Isotopes*, 109 :544-546, 2016. DOI : 10.1016/j.apradiso.2015.11.037. (Visité le 21/02/2022).
- [13] F. JALLU, A. RENELEAU, P. SOYER et J. LORIDON. Dismantling and decommissioning : The interest of passive neutron measurement to control and characterise radioactive wastes containing uranium. en. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 271 :48-54, 2012. ISSN : 0168-583X. DOI : 10.1016/j.nimb.2011.09.018. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168583X11008822> (visité le 21/02/2022).
- [14] N. E. HOLDEN. Total and spontaneous fission half-lives for uranium, plutonium, americium and curium nuclides. English. *Pure and Applied Chemistry*, 61(8) :1483-1504, 1989. ISSN : 1365-3075. DOI : 10.1351/pac198961081483. URL : <https://www.degruyter.com/document/doi/10.1351/pac198961081483/html> (visité le 21/02/2022). Publisher : De Gruyter.
- [15] DEN CEA. *L'instrumentation et la mesure en milieu nucléaire*. Français. Le Moniteur, 2018. ISBN : 978-2-281-14303-4. URL : https://www.cea.fr/multimedia/Documents/publications/monographie-nucleaire/CEA_Monographie8_Instrumentation-mesure-milieu-nucleaire_2018_Fr.pdf.
- [16] V. MOULIN et J.-L. PETTIER. Détection CdZnTe pour l'imagerie X haute-énergie. Français, 2008. URL : <https://www.ndt.net/article/cofrend2008/papers/051.pdf> (visité le 21/02/2022).
- [17] F. CARREL, M. AGELOU, M. GMAR, F. LAINÉ, B. POUMAREDE et B. RATTONI. Measurement of Plutonium in Large Concrete Radioactive Waste Packages by Photon Activation Analysis. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 57(6) :3687-3693, 2010. ISSN : 1558-1578. DOI : 10.1109/TNS.2010.2087356. Conference Name : IEEE Transactions on Nuclear Science.
- [18] F. JALLU, C. PASSARD et E. BRACKX. Application of active and passive neutron non destructive assay methods to concrete radioactive waste drums. en. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 269(18) :1956-1962, septembre 2011. ISSN : 0168-583X. DOI : 10.1016/j.nimb.2011.05.024. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168583X1100557X> (visité le 09/03/2022).
- [19] A. SARI, F. CARREL, F. LAINÉ et A. LYOUSSI. Neutron interrogation of actinides with a 17 MeV electron accelerator and first results from photon and neutron interrogation non-simultaneous measurements combination. en. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 312 :30-35, 2013. ISSN : 0168-583X. DOI : 10.1016/j.nimb.2013.06.020. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168583X13006484> (visité le 21/02/2022).
- [20] W. E. KUNZ, J. D. ATENCIO et J. T. CALDWELL. A 1 nCi/g sensitivity transuranic waste assay system using pulsed neutron interrogation. English. In page 8, 1980. URL : <https://permalink.lanl.gov/object/tr?what=info:lanl-repo/lareport/LA-UR-80-1794> (visité le 21/02/2022).
- [21] A. -C. RAOUX, A. LYOUSSI, C. PASSARD, C. DENIS, J. LORIDON, J. MISRAKI et P. CHANY. Transuranic waste assay by neutron interrogation and online prompt and delayed neutron measurement. en. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 207(2) :186-194, juin 2003. ISSN : 0168-583X. DOI : 10.1016/S0168-583X(03)00451-8. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168583X03004518> (visité le 09/03/2022).
- [22] T. NICOL, B. PÉROT, C. CARASCO, E. BRACKX, A. MARIANI, C. PASSARD, E. MAUERHOFER et J. COLLOT. Feasibility study of ^{235}U and ^{239}Pu characterization in radioactive waste drums using neutron-induced fission delayed gamma rays. English. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 832 :85-94, 2016. ISSN : 0168-9002. DOI : 10.1016/j.nima.2016.06.055. URL :

- <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900216305976> (visité le 21/02/2022).
- [23] G. MARCOS-ROBREDO, M. P. CASTRO-GARCÍA, M. Á. REY-RONCO et T. ALONSO-SÁNCHEZ. Determination of the Theoretical Spectrum of Gamma Emission Generated by DGNA in Samples of Ashes of Thermal Power Plants. English. In *Proceedings*, tome 2, page 1460. Multidisciplinary Digital Publishing Institute, 2018. DOI : 10.3390/proceedings2231460. URL : <https://www.mdpi.com/2504-3900/2/23/1460> (visité le 21/02/2022). Number : 23.
- [24] F. CARREL, M. AGELOU, M. GMAR, F. LAINÉ, J. LORIDON, J.-L. MA, C. PASSARD et B. POUMAREDE. Identification and Differentiation of Actinides Inside Nuclear Waste Packages by Measurement of Delayed Gammas. English. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 57(5) :2862-2871, 2010. ISSN : 1558-1578. DOI : 10.1109/TNS.2010.2064334. Conference Name : IEEE Transactions on Nuclear Science.
- [25] E. B. NORMAN, S. G. PRUSSIN, R.-M. LARIMER, H. SHUGART, E. BROWNE, A. R. SMITH, R. J. McDONALD, H. NITSCHKE, P. GUPTA, M. I. FRANK et T. B. GOSNELL. Signatures of fissile materials : high-energy γ rays following fission. English. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 521(2) :608-610, 2004. ISSN : 0168-9002. DOI : 10.1016/j.nima.2003.10.097. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900203028948> (visité le 21/02/2022).
- [26] R. DE STEFANO, B. PÉROT, C. CARASCO, E. SIMON, M. RAMDHANE, V. BOTTAU, J. LORIDON et C. ELEON. Pulsed neutron interrogation with PVT plastic scintillators to detect nuclear materials. en. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 976 :164276, octobre 2020. ISSN : 0168-9002. DOI : 10.1016/j.nima.2020.164276. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900220306720> (visité le 16/03/2022).
- [27] R. DE STEFANO, C. CARASCO, B. PÉROT, E. SIMON, T. NICOL et E. MAUERHOFER. Feasibility study of fissile mass detection in 870 L radioactive waste drums using delayed gamma rays from neutron-induced fission. en. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 322(2) :1185-1194, novembre 2019. ISSN : 1588-2780. DOI : 10.1007/s10967-019-06731-2. URL : <https://doi.org/10.1007/s10967-019-06731-2> (visité le 24/02/2022).
- [28] A. LYOUSSI. *Dosage, par photofissions induites, de faibles quantités d'actinides dans les déchets radioactifs enrobés*. Français. Thèse de doctorat, Clermont-Ferrand 2, 1994. URL : <http://www.theses.fr/1994CLF21618> (visité le 21/02/2022).
- [29] F. JALLU. *Double interrogation simultanée neutrons et photons utilisant un accélérateur d'électrons pour la caractérisation séparée des actinides dans les déchets radioactifs enrobés*. Français. Thèse de doctorat, Clermont-Ferrand 2, 1999. URL : <http://www.theses.fr/1999CLF22147> (visité le 21/02/2022).
- [30] M. GMAR. *Dosage et différenciation des actinides dans les colis de déchets radioactifs par photofission et spectrométrie des gamma retardés des produits de fission*. Français. Thèse de doctorat, Grenoble INPG, 2000. URL : <http://www.theses.fr/2000INPG0042> (visité le 21/02/2022).
- [31] N. SAUREL. *Tomographie des actinides par photofission dans des colis de déchets radioactifs de grand volume*. Français. Thèse de doctorat, Université Blaise Pascal Clermont-Ferrand, 2002.
- [32] F. CARREL. *Etude et développement d'une technique de dosage des actinides dans les colis de déchets radioactifs par interrogation photonique ou neutronique active et spectrométrie des gamma retardés*. Français. Thèse de doctorat, Caen, 2007. URL : <http://www.theses.fr/2007CAEN2022> (visité le 21/02/2022).
- [33] V. MACARY. *Etude expérimentale de l'émission de neutrons retardés issus de la photofission des actinides*. Français. Thèse de doctorat, Paris 6, 2008. URL : <http://www.theses.fr/2008PA066066> (visité le 21/02/2022).

- [34] A. SARI. *Étude, évaluation, et validation des potentialités des accélérateurs d'électrons comme outils polyvalents de caractérisation des colis de déchets radioactifs*. Français. Thèse de doctorat, Paris 11, 2013. URL : <http://www.theses.fr/2013PA112154> (visité le 21/02/2022).
- [35] Chiffres clés de Cigéo et du stockage des déchets nucléaires | sur Cigéo - Centre d'informations et de ressources sur CIGEO. fr. URL : <https://www.cigeo.gouv.fr/chiffres-cles-de-cigeo-et-du-stockage-des-dechets-nucleaires-135> (visité le 24/02/2022).
- [36] Cour des COMPTES. Le démantèlement des installations nucléaires et la gestion des déchets radioactifs. Français. Rapport technique, 2005. URL : <https://archive.wikiwix.com/cache/index2.php?url=http%3A%2F%2Fwww.ccomptes.fr%2FCour-des-comptes%2Fpublications%2Frapports%2Fnucleaire%2Fintegral.pdf%2Findex.html#federation=archive.wikiwix.com>.
- [37] Autorité de SÛRETÉ NUCLÉAIRE (ASN). Installation CEDRA (Conditionnement et Entreposage de Déchets RAdioactifs). Français. URL : <https://www.asn.fr/tout-sur-l-asn/l-asn-en-region/provence-alpes-cote-d-azur/cedra> (visité le 21/02/2022).
- [38] O. HAHN et F. STRASSMANN. Über den Nachweis und das Verhalten der bei der Bestrahlung des Urans mittels Neutronen entstehenden Erdalkalimetalle. de. *Naturwissenschaften*, 27 :11-15, 1939.
- [39] E. SIMON. Proposition de programme de R&D pluriannuel pour le développement de l'IPA pour la caractérisation non destructive des colis de l'INB 56. Document Interne CEA.
- [40] D. A. BROWN, M. B. CHADWICK, R. CAPOTE, A. C. KAHLER, A. TRKOV, M. W. HERMAN, A. A. SONZOGNI, Y. DANON, A. D. CARLSON, M. DUNN, D. L. SMITH, G. M. HALE, G. ARBANAS, R. ARCILLA, C. R. BATES, B. BECK, B. BECKER, F. BROWN, R. J. CASPERSON, J. CONLIN, D. E. CULLEN, M. -A. DESCALLE, R. FIRESTONE, T. GAINES, K. H. GUBER, A. I. HAWARI, J. HOLMES, T. D. JOHNSON, T. KAWANO, B. C. KIEDROWSKI, A. J. KONING, S. KOPECKY, L. LEAL, J. P. LESTONE, C. LUBITZ, J. I. MÁRQUEZ DAMIÁN, C. M. MATTOON, E. A. MCCUTCHAN, S. MUGHABGHAB, P. NAVRATIL, D. NEUDECKER, G. P. A. NOBRE, G. NOGUERE, M. PARIS, M. T. PIGNI, A. J. PLOMPEN, B. PRITYCHENKO, V. G. PRONYAEV, D. ROUBTSOV, D. ROCHMAN, P. ROMANO, P. SCHILLEBEECKX, S. SIMAKOV, M. SIN, I. SIRAKOV, B. SLEAFORD, V. SOBES, E. S. SOUKHOVITSKII, I. STETCU, P. TALOU, I. THOMPSON, S. van der MARCK, L. WELSER-SHERRILL, D. WIARDA, M. WHITE, J. L. WORMALD, R. Q. WRIGHT, M. ZERKLE, G. ŽEROVNIK et Y. ZHU. ENDF/B-VIII.0 : The 8th Major Release of the Nuclear Reaction Data Library with CIELO-project Cross Sections, New Standards and Thermal Scattering Data. en. *Nuclear Data Sheets*. Special Issue on Nuclear Reaction Data, 148 :1-142, février 2018. ISSN : 0090-3752. DOI : 10.1016/j.nds.2018.02.001. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0090375218300206> (visité le 25/02/2022).
- [41] N. BOHR et J. A. WHEELER. The Mechanism of Nuclear Fission. English. *Physical Review*, 56 :426-450, 1939. ISSN : 0031-899X. DOI : 10.1103/PhysRev.56.426. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.56.426> (visité le 21/02/2022).
- [42] R. O. HAXBY, W. E. SHOUPP, W. E. STEPHENS et W. H. WELLS. Photo-Fission of Uranium and Thorium. English. *Physical Review*, 59 :57-62, 1941. ISSN : 0031-899X. DOI : 10.1103/PhysRev.59.57. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.59.57> (visité le 21/02/2022).
- [43] J. T. CALDWELL et E. J. DOWDY. Experimental Determination of Photofission Neutron Multiplicities for Eight Isotopes in the Mass Range $232 \leq A \leq 239$. English. *Nuclear Science and Engineering*, 56(2) :179-187, 1975. ISSN : 0029-5639. URL : <https://doi.org/10.13182/NSE75-A26656> (visité le 21/02/2022).
- [44] J. L. MEASON et P. K. KURODA. Photofission of ^{238}U Induced by 17.5-MeV Monoenergetic Gamma Rays. English. *Physical Review*, 142(3) :691-695, 1966. ISSN : 0031-899X. DOI : 10.1103/PhysRev.142.691. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.142.691> (visité le 21/02/2022).

- [45] R. HAJIMA. Status and Perspectives of Compton Sources. English. *Physics Procedia*. Proceedings of the International Conference "Synchrotron and Free electron laser Radiation : generation and application" (SFR-2016), July 4 - 7, 2016, Novosibirsk, Russia, 84 :35-39, 2016. ISSN : 1875-3892. DOI : 10.1016/j.phpro.2016.11.007. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1875389216303029> (visité le 21/02/2022).
- [46] H. R. WELLER, M. W. AHMED et Y. K. WU. Nuclear Physics Research at the High Intensity Gamma-Ray Source (HI γ S). English. *Nuclear Physics News*, 25(3) :19-24, 2015. ISSN : 1061-9127. DOI : 10.1080/10619127.2015.1035932. URL : <https://doi.org/10.1080/10619127.2015.1035932> (visité le 21/02/2022). Publisher : Taylor & Francis _eprint : <https://doi.org/10.1080/10619127.2015.1035932>.
- [47] KRISHICHAYAN, M. BHIKE, C. R. HOWELL, A. P. TONCHEV et W. TORNOW. Fission product yield measurements using monoenergetic photon beams. English. *Physical Review C*, 100, 2019. ISSN : 2469-9985, 2469-9993. DOI : 10.1103/PhysRevC.100.014608. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.100.014608> (visité le 21/02/2022).
- [48] S. M. SELTZER et M. J. BERGER. Bremsstrahlung energy spectra from electrons with kinetic energy 1 keV–10 GeV incident on screened nuclei and orbital electrons of neutral atoms with $Z = 1-100$. English. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 35(3) :345-418, 1986. ISSN : 0092-640X. DOI : 10.1016/0092-640X(86)90014-8. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0092640X86900148> (visité le 21/02/2022).
- [49] P. M. DIGHE, M. VINOD, S. G. THOMBARE, S. PRAFULLA, N. R. KAMBLE, L. P. KAMBLE, P. V. BHATNAGAR et D. DAS. Photofission method for quantification of fissile material in large drums. English. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 946, 2019. ISSN : 0168-9002. DOI : 10.1016/j.nima.2019.162624. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900219311234> (visité le 21/02/2022).
- [50] Instrumentation for cleaning and decommissioning. en-US. URL : <https://www.micado-project.eu/> (visité le 21/02/2022).
- [51] Z. MEKHALFA, C. HELBERT et B. DUMERCQ. Report Deliverable D2.1 : List of system requirements. English. Rapport technique, 2018.
- [52] I. MELESHENKOVSKII, A. ELAYEB, R. DE STEFANO et A. SARI. Feasibility study of the photofission technique for radiological characterization of 220-L concrete-lined nuclear waste drums using 7 or 9 MeV linacs. en. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 1029 :166422, avril 2022. ISSN : 0168-9002. DOI : 10.1016/j.nima.2022.166422. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900222000717> (visité le 25/02/2022).
- [53] M. GMAR, F. JEANNEAU, F. LAINÉ, H. MAKIL, B. POUMARÈDE et F. TOLA. Assessment of actinide mass embedded in large concrete waste packages by photon interrogation and photofission. English. *Applied Radiation and Isotopes*, 65 :613-619, 2005. DOI : 10.1016/j.apradiso.2005.05.010. (Visité le 21/02/2022).
- [54] F. CARREL, M. AGELOU, M. GMAR et F. LAINÉ. Detection of high-energy delayed gammas for nuclear waste packages characterization. en. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 652(1) :137-139, 2011. ISSN : 0168-9002. DOI : 10.1016/j.nima.2010.08.014. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900210017389> (visité le 21/02/2022).
- [55] M. GMAR, F. JEANNEAU, F. LAINÉ et B. POUMARÈDE. Photofission tomography of nuclear waste packages. English. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 562(2) :1089-1092, 2006. ISSN : 0168-9002. DOI : 10.1016/j.nima.2006.02.005. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900206002336> (visité le 21/02/2022).

- [56] M. AGELOU, F. CARREL, M. GMAR, F. LAINE, B. POUMAREDE et F. TOLA. Photofission tomography of nuclear waste packages. English. In *2007 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record*, pages 801-804, 2007. DOI : 10.1109/NSSMIC.2007.4436449. ISSN : 1082-3654.
- [57] N. SAUREL, J. M. CAPDEVILA, N. HUOT et M. GMAR. Experimental and simulated assay of actinides in a real waste package. English. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 550(3) :691-699, 2005. ISSN : 0168-9002. DOI : 10.1016/j.nima.2005.05.058. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900205012787> (visité le 21/02/2022).
- [58] F. JALLU, A. LYOUSSI, C. PASSARD, E. PAYAN, H. RECROIX, G. NURDIN, A. BUISSON et J. ALLANO. The simultaneous neutron and photon interrogation method for fissile and non-fissile element separation in radioactive waste drums. en. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 170(3) :489-500, 2000. ISSN : 0168-583X. DOI : 10.1016/S0168-583X(00)00327-X. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168583X0000327X> (visité le 21/02/2022).
- [59] F. JALLU, A. LYOUSSI, C. PASSARD, E. PAYAN, H. RECROIX, G. NURDIN, A. BUISSON et J. ALLANO. Fissile and non-fissile element separation in concrete radioactive waste drums using the SIMPHONIE method. en. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 179(2) :267-278, 2001. ISSN : 0168-583X. DOI : 10.1016/S0168-583X(01)00453-0. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168583X01004530> (visité le 21/02/2022).
- [60] Catalogue des familles | Andra Inventaire. Français, 2022. URL : <https://inventaire.andra.fr/les-donnees/les-dechets-radioactifs/catalogue-des-familles> (visité le 21/02/2022).
- [61] L. Z. DZHILAVYAN, A. M. LAPIK, V. G. NEDOREZOV, V. N. PONOMAREV, A. V. RUSAKOV et G. V. SOLODUKHOV. Delayed Neutrons from Photofission of ^{238}U at $E_\gamma \leq 10$ MeV. English. *Physics of Particles and Nuclei*, 50(5) :626-632, 2019. ISSN : 1531-8559. DOI : 10.1134/S106377961905006X. URL : <https://doi.org/10.1134/S106377961905006X> (visité le 21/02/2022).
- [62] A. LYOUSSI, J. ROMEYER-DHERBEY, F. JALLU, E. PAYAN, A. BUISSON, G. NURDIN et J. ALLANO. Transuranic waste detection by photon interrogation and on-line delayed neutron counting. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 160(2) :280-289, 2000. ISSN : 1558-1578. DOI : 10.1016/S0168-583X(99)00586-8.
- [63] X. WEN et H. YANG. Simulation of delayed γ -ray emission following photofission reactions induced by pulsed bremsstrahlung x-rays using MCNPX and experimental validation. English. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 840 :102-106, 2016. ISSN : 0168-9002. DOI : 10.1016/j.nima.2016.10.012. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900216310385> (visité le 21/02/2022).
- [64] T. GOZANI, J. STEVENSON et M. J. KING. Neutron threshold activation detectors (TAD) for the detection of fissions. English. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 652(1) :334-337, 2011. ISSN : 0168-9002. DOI : 10.1016/j.nima.2011.01.029. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900211000805> (visité le 21/02/2022).
- [65] S. OZEROV, A. R. HAGEN, B. C. ARCHAMBAULT, A. A. SANSONE, N. M. BOYLE, T. F. GRIMES, N. J. RANCILIO, J. M. PLANTENGA et R. P. TALEYARKHAN. Clinical 6 MV X-Ray facility photo-neutron/fission interrogations with TMFD sensors. en. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 1029 :166395, 2022. ISSN : 0168-9002. DOI : 10.1016/j.nima.2022.166395. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900222000572> (visité le 25/02/2022).

- [66] M. GMAR et J. M. CAPDEVILA. Use of delayed gamma spectra for detection of actinides (U,Pu) by photofission. English. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 422(1-3) :841-845, 1999. ISSN : 0168-9002. DOI : 10.1016/S0168-9002(98)01121-8. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900298011218> (visité le 21/02/2022).
- [67] T. GOZANI. Active nondestructive assay of nuclear materials : principles and applications. English. Rapport technique NUREG/CR-0602, SAI-MLM-2585, 6215952, 1981. DOI : 10.2172/6215952. URL : <http://www.osti.gov/servlets/purl/6215952-7PMPa2/> (visité le 21/02/2022).
- [68] M. GMAR, E. BERTHOUMIEUX, S. BOYER, F. CARREL, D. DORÉ, M.-L. GIACRI, F. LAINÉ, B. POUMARÈDE, D. RIDIKAS et A. VAN LAUWE. Detection of nuclear material by photon activation inside cargo containers. In Orlando (Kissimmee), FL, 2006. DOI : 10.1117/12.665571. URL : <http://proceedings.spiedigitallibrary.org/proceeding.aspx?doi=10.1117/12.665571> (visité le 21/02/2022).
- [69] C. L. HOLLAS, D. A. CLOSE et C. E. MOSS. Analysis of fissionable material using delayed gamma rays from photofission. English. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 24-25 :503-505, 1987. ISSN : 0168-583X. DOI : 10.1016/0168-583X(87)90695-1. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0168583X87906951> (visité le 21/02/2022).
- [70] E. SIMON, F. JALLU, B. PÉROT et S. PLUMERI. Feasibility study of fissile mass quantification by photofission delayed gamma rays in radioactive waste packages using MCNPX. English. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 840 :28-35, 2016. ISSN : 0168-9002. DOI : 10.1016/j.nima.2016.09.047. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900216309858> (visité le 21/02/2022).
- [71] C. ROBERT-COUTANT, V. MOULIN, R. SAUZE, P. RIZO et J. M. CASAGRANDE. Estimation of the matrix attenuation in heterogeneous radioactive waste drums using dual-energy computed tomography. English. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 422(1-3) :949-956, 1999. ISSN : 0168-9002. DOI : 10.1016/S0168-9002(98)01053-5. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900298010535> (visité le 21/02/2022).
- [72] E. JACOBS, H. THIERENS, D. DE FRENNE, A. DE CLERCQ, P. D'HONDT, P. DE GELDER et A. J. DERUYTTER. Product yields for the photofission of ^{238}U with 12-, 15-, 20-, 30-, and 70-MeV bremsstrahlung. English. *Physical Review C*, 19(2) :422-432, 1979. ISSN : 0556-2813. DOI : 10.1103/PhysRevC.19.422. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.19.422> (visité le 21/02/2022).
- [73] E. JACOBS, H. THIERENS, D. DE FRENNE, A. DE CLERCQ, P. D'HONDT, P. DE GELDER et A. J. DERUYTTER. Product yields for the photofission of ^{235}U with 12-, 15-, 20-, 30-, and 70-MeV bremsstrahlung. English. *Physical Review C*, 21(1) :237-245, 1980. ISSN : 0556-2813. DOI : 10.1103/PhysRevC.21.237. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.21.237> (visité le 21/02/2022).
- [74] E. JACOBS, A. DE CLERCQ, H. THIERENS, D. DE FRENNE, P. D'HONDT, P. DE GELDER et A. J. DERUYTTER. Fragment mass and kinetic energy distributions for the photofission of ^{235}U with 12-, 15-, 20-, 30-, and 70-MeV bremsstrahlung. English. *Physical Review C*, 24(4) :1795-1798, 1981. ISSN : 0556-2813. DOI : 10.1103/PhysRevC.24.1795. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.24.1795> (visité le 21/02/2022).
- [75] D. DE FRENNE, H. THIERENS, B. PROOT, E. JACOBS, P. DE GELDER et A. DE CLERCQ. Isotopic distributions and elemental yields for the photofission of $^{235,238}\text{U}$ with 12-30-MeV bremsstrahlung. English. *Physical Review C*, 29(5) :1908-1911, 1984. ISSN : 0556-2813. DOI : 10.1103/PhysRevC.29.1908. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.29.1908> (visité le 21/02/2022).

- [76] D. BERNARD, O. SEROT, E. SIMON, L. BOUCHER et S. PLUMERI. A Photofission Delayed γ -ray Spectra Calculation Tool for the Conception of a Nuclear Material Characterization Facility. English. In A. LYOUSSI, M. CARETTE, M. GIOT, P. LE DÛ, C. REYNARD-CARETTE, M. SCHYNS et L. VERMEEREN, éditeurs, *EPJ Web of Conferences*, tome 170, 2018. DOI : 10.1051/epjconf/201817006001. URL : <https://www.epj-conferences.org/10.1051/epjconf/201817006001> (visité le 21/02/2022).
- [77] K. -H. SCHMIDT, B. JURADO, C. AMOUROUX et C. SCHMITT. General Description of Fission Observables : GEF Model Code. English. *Nuclear Data Sheets*. Special Issue on Nuclear Reaction Data, 131 :107-221, 2016. ISSN : 0090-3752. DOI : 10.1016/j.nds.2015.12.009. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0090375215000745> (visité le 21/02/2022).
- [78] R. B. WALTON, R. E. SUND, E. HADDAD, J. C. YOUNG et C. W. COOK. Delayed Gamma Rays from Photofission of ^{238}U , ^{235}U , and ^{232}Th . English. *Physical Review*, 134(4B) :824-832, 1964. DOI : 10.1103/PhysRev.134.B824. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.134.B824> (visité le 21/02/2022). Publisher : American Physical Society.
- [79] S. V. ZUYEV, E. S. KONOBEEVSKI, M. V. MORDOVSKOY, V. G. NEDOREZOV, V. N. PONOMAREV et G. V. SOLODUKHOV. Measurement of the Delayed Photon Yield of the Photofission Reaction as a Method for Identifying Fissile Materials. English. *Physics of Particles and Nuclei*, 50(5) :616-618, 2019. ISSN : 1531-8559. DOI : 10.1134/S1063779619050265. URL : <https://doi.org/10.1134/S1063779619050265> (visité le 21/02/2022).
- [80] M. DELARUE, E. SIMON, B. PÉROT, P. G. ALLINEI, N. ESTRE, E. PAYAN, D. ECK, D. TISSEUR, I. ESPAGNON et J. COLLOT. Measurement of cumulative photofission yields of ^{235}U and ^{238}U with a 16 MeV Bremsstrahlung photon beam. en. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 1011 :165598, septembre 2021. ISSN : 0168-9002. DOI : 10.1016/j.nima.2021.165598. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900221005830> (visité le 11/03/2022).
- [81] D. H. BEDDINGFIELD et F. E. CECIL. Identification of fissile materials from fission product gamma-ray spectra. English. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 417(2-3) :405-412, 1998. ISSN : 0168-9002. DOI : 10.1016/S0168-9002(98)00781-5. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900298007815> (visité le 21/02/2022).
- [82] Nuclear Data SECTION. Handbook on photonuclear data for applications - Cross-sections and spectra. English. Rapport technique IAEA-TECDOC-1178, IAEA, 2000.
- [83] G. C. BALDWIN et G. S. KLAIBER. Photo-Fission in Heavy Elements. English. *Physical Review*, 71(1) :3-10, 1947. ISSN : 0031-899X. DOI : 10.1103/PhysRev.71.3. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.71.3> (visité le 21/02/2022).
- [84] E. J. WINHOLD et I. HALPERN. Anisotropic Photofission. English. *Physical Review*, 103(4) :990-1000, 1956. ISSN : 0031-899X. DOI : 10.1103/PhysRev.103.990. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.103.990> (visité le 21/02/2022).
- [85] KRISHICHAYAN, M. BHIKE, S. W. FINCH, C. R. HOWELL, A. P. TONCHEV et W. TORNOW. Photofission cross-section ratio measurement of $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ using monoenergetic photons in the energy range of 9.0–16.6MeV. English. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 854 :40-44, 2017. ISSN : 0168-9002. DOI : 10.1016/j.nima.2017.02.043. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900217302279> (visité le 21/02/2022).
- [86] KRISHICHAYAN, S. W. FINCH, C. R. HOWELL, A. P. TONCHEV et W. TORNOW. Monoenergetic photon-induced fission cross-section ratio measurements for ^{235}U , ^{238}U , and ^{239}Pu from 9.0 to 17.0 MeV. English. *Physical Review C*, 98, 2018. DOI : 10.1103/PhysRevC.98.014608. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.98.014608> (visité le 21/02/2022).

- [87] H. NAIK, F. CARREL, G. N. KIM, F. LAINÉ, A. SARI, S. NORMAND et A. GOSWAMI. Mass yield distributions of fission products from photo-fission of ^{238}U induced by 11.5–17.3 MeV bremsstrahlung. English. *The European Physical Journal A*, 49(7) :94, 2013. ISSN : 1434-6001, 1434-601X. DOI : 10.1140/epja/i2013-13094-7. URL : <http://link.springer.com/10.1140/epja/i2013-13094-7> (visité le 21/02/2022).
- [88] H. NAIK, V. T. NIMJE, D. RAJ, S. V. SURYANARAYANA, A. GOSWAMI, Sarbjit SINGH, S. N. ACHARYA, K. C. MITTAL, S. GANESAN, P. CHANDRACHOODAN, V. K. MANCHANDA, V. VENUGOPAL et S. BANARJEE. Mass distribution in the bremsstrahlung-induced fission of ^{232}Th , ^{238}U and ^{240}Pu . English. *Nuclear Physics A*, 853(1) :1-25, 2011. ISSN : 0375-9474. DOI : 10.1016/j.nuclphysa.2011.01.009. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0375947411000200> (visité le 21/02/2022).
- [89] H. NAIK, B. S. SHIVASHANKAR, H. G. RAJ PRAKASH, Deves RAJ, Ganesh SANJEEV, N. KARUNAKARA, H. M. SOMASHEKARAPPA, S. GANESAN, G. N. KIM et A. GOSWAMI. Measurements of fission yield in 8 MeV bremsstrahlung induced fission of ^{232}Th and ^{238}U . en. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 299 :127-137, 2014. ISSN : 1588-2780. DOI : 10.1007/s10967-013-2719-0. URL : <https://doi.org/10.1007/s10967-013-2719-0> (visité le 21/02/2022).
- [90] F. CARREL, M. AGELOU, M. GMAR, F. LAINÉ, J. LORIDON, J.-L. MA, C. PASSARD et B. POUMAREDE. New Experimental Results on the Cumulative Yields From Thermal Fission of ^{235}U and ^{239}Pu and From Photofission of ^{235}U and ^{238}U Induced by Bremsstrahlung. English. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 58(4) :2064-2072, 2011. ISSN : 1558-1578. DOI : 10.1109/TNS.2011.2157169. Conference Name : IEEE Transactions on Nuclear Science.
- [91] B. S. ISHKHANOV et A. A. KUZNETSOV. ^{238}U photofission in the energy region of the giant dipole resonance. English. *Physics of Atomic Nuclei*, 77(7) :824-833, 2014. ISSN : 1063-7788, 1562-692X. DOI : 10.1134/S1063778814070084. URL : <http://link.springer.com/10.1134/S1063778814070084> (visité le 21/02/2022).
- [92] S. KAHANE et A. WOLF. Photofission of ^{238}U with neutron-capture gamma rays. *Physical Review C*, 32(6) :1944-1955, décembre 1985. DOI : 10.1103/PhysRevC.32.1944. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.32.1944> (visité le 25/02/2022). Publisher : American Physical Society.
- [93] X. WEN et H. YANG. Photofission product yields of ^{238}U and ^{239}Pu with 22-MeV bremsstrahlung. en. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 821 :34-39, 2016. DOI : 10.1016/j.nima.2016.03.051. (Visité le 25/02/2022).
- [94] A. FOLEY et H. YANG. Short-lived photofission product yields from ^{238}U and ^{232}Th at Bremsstrahlung X-ray endpoint energies of 8, 14, and 20 MeV for nuclear forensics isotope production applications. en. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 1013 :165621, octobre 2021. ISSN : 0168-9002. DOI : 10.1016/j.nima.2021.165621. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900221006069> (visité le 25/02/2022).
- [95] M. BHIKE, W. TORNOW, KRISHICHAYAN et A. P. TONCHEV. Exploratory study of fission product yield determination from photofission of ^{239}Pu at 11 MeV with monoenergetic photons. *Physical Review C*, 95(2) :024608, février 2017. DOI : 10.1103/PhysRevC.95.024608. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.95.024608> (visité le 25/02/2022). Publisher : American Physical Society.
- [96] M. Y. KONDRAT'KO, A. V. MOSESOV, K. A. PETRZHAK et O. A. TEODOROVICH. Yields of photofission of ^{239}Pu . *Atomnaya Energiya*, 50(1) :34-36, 1981.
- [97] N. ESTRE, D. ECK, J.-L. PETTIER, E. PAYAN, C. ROURE et E. SIMON. High-Energy X-Ray Imaging Applied to Nondestructive Characterization of Large Nuclear Waste Drums. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 62(6) :3104-3109, 2015. ISSN : 1558-1578. DOI : 10.1109/TNS.2015.2498190. Conference Name : IEEE Transactions on Nuclear Science.

- [98] IAEA (International Atomic Energy AGENCY). Handbook on photonuclear data for applications - Cross-sections and spectra. English. Rapport technique TECDOC-1178, IAEA (International Atomic Energy Agency), 2000. URL : https://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/te_1178_prn.pdf (visité le 18/03/2022).
- [99] M. BRICKA, V.-D. NGUYEN et L. PORTHEOS. Le spectromètre neutrons à activation SNAC - Principe - Description - Utilisation. Français. Rapport technique CEA-R-4226, 1971.
- [100] M. BRICKA. La formulation linéaire en spectrométrie des neutrons - Méthode des spectres modèles. Français. Rapport technique CEA-R-4825, 1977.
- [101] A. K. Md. L. RAHMAN, K. KATO, H. ARIMA, N. SHIGYO, K. ISHIBASHI, J.-I. HORI et K. NAKAJIMA. Study on effective average (n) cross section for ^{89}Y , ^{90}Zr , ^{93}Nb and ^{133}Cs and ($3n$) cross section for ^{99}Tc . English. *J. Nucl. Sci. Tech.*, 47 :618-625, 2010.
- [102] H. NAIK, S. V. SURYANARAYANA, K. C. JAGADEESAN, S. V. THAKARE, P. V. JOSHI, V. T. NIMJE, K. C. MITTAL, A. GOSWAMI, V. VENUGOPAL et S. KAILAS. An alternative route for the preparation of the medical isotope ^{99}Mo from the $^{238}\text{U}(\gamma, f)$ and $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)$ reactions. English. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 295 :807-816, 2013. ISSN : 0236-5731, 1588-2780. DOI : 10.1007/s10967-012-1958-9. URL : <http://link.springer.com/10.1007/s10967-012-1958-9> (visité le 21/02/2022).
- [103] R. NATH et R. J. SCHULZ. Determination of high-energy x-ray spectra by photoactivation. English. *Medical Physics*, 3(3) :133-141, 1976. URL : <https://aapm.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1118/1.594217> (visité le 01/04/2022).
- [104] D. B. PELOWITZ. MCNP 6TM User's Manual. Rapport technique, Los Alamos National Laboratory, 2013.
- [105] THALES. Rapport de dynamique faisceau - Reconditionnement du LINAC Saturne. Rapport technique, 2016.
- [106] A. J. M. PLOMPEN, O. CABELLOS, C. DE SAINT JEAN, M. FLEMING, A. ALGORA, M. ANGELONE, P. ARCHIER, E. BAUGE, O. BERSILLON, A. BLOKHIN, F. CANTARGI, A. CHEBBOUBI, C. DIEZ, H. DUARTE, E. DUPONT, J. DYRDA, B. ERASMUS, L. FIORITO, U. FISCHER, D. FLAMMINI, D. FOLIGNO, M.R. GILBERT, J.R. GRANADA, W. HAECK, F.-J. HAMBSCH, P. HELGESSON, S. HILAIRE, I. HILL, M. HURSIN, R. ICHOU, R. JACQMIN, B. JANSKY, C. JOUANNE, M.A. KELLETT, D.H. KIM, H.I. KIM, I. KODELI, A.J. KONING, A.Y. KONOBAYEV, S. KOPECKY, B. KOS, A. KRÁSA, L.C. LEAL, N. LECLAIRE, P. LECONTE, Y.O. LEE, H. LEEB, O. LITAIZE, M. MAJERLE, J.I. MÁRQUEZ DAMIÁN, F. MICHEL-SENDIS, R.W. MILLS, B. MORILLON, G. NOGUÈRE, M. PECCHIA, S. PELLONI, P. PERESLAVTSEV, R.J. PERRY, D. ROCHMAN, A. RÖHRMOSER, P. ROMAIN, P. ROMOJARO, D. ROUBTSOV, P. SAUVAN, P. SCHILLEBEECKX, K.H. SCHMIDT, O. SEROT, S. SIMAKOV, I. SIRAKOV, H. SJÖSTRAND, A. STANKOVSKIY, J.C. SUBLET, P. TAMAGNO, A. TRKOV, S. van der MARCK, F. ÁLVAREZ-VELARDE, R. VILLARI, T.C. WARE, K. YOKOYAMA et G. ŽEROVNIK. The joint evaluated fission and fusion nuclear data library, JEFF-3.3. English. *European Physical Journal A*, 56(7), 2020. ISSN : 1434-6001. DOI : 10.1140/epja/s10050-020-00141-9.
- [107] E. L. ROBINSON, R. C. HAGEBAUER et E. EICHLER. Decay of ^{89}Zr and $^{89\text{m}}\text{Zr}$ and levels of ^{89}Y . English. *Nuclear Physics A*, 123(2), 1969. URL : [https://doi.org/10.1016/0375-9474\(69\)90514-4](https://doi.org/10.1016/0375-9474(69)90514-4).
- [108] N. OTUKA, E. DUPONT, V. SEMKOVA, B. PRITYCHENKO, A. I. BLOKHIN, M. AIKAWA, S. BABYKINA, M. BOSSANT, G. CHEN, S. DUNAeva, R. A. FORREST, T. FUKAHORI, N. FURUTACHI, S. GANESAN, Z. GE, O. O. GRITZAY, M. HERMAN, S. HLAVÁČ, K. KATŌ, B. LALREMRUATA, Y. O. LEE, A. MAKINAGA, K. MATSUMOTO, M. MIKHAYLYUKOVA, G. PIKULINA, V. G. PRONYAEV, A. SAXENA, O. SCHWERER, S. P. SIMAKOV, N. SOPPERA, R. SUZUKI, S. TAKÁCS, X. TAO, S. TAOVA, F. TÁRKÁNYI, V. V. VARLAMOV, J. WANG, S. C. YANG, V. ZERKIN et Y. ZHUANG. Towards a More Complete and Accurate Experimental Nuclear Reaction Data Library (EXFOR) : International Collaboration Between Nuclear Reaction Data Centres (NRDC). en. *Nuclear Data*

- Sheets*, 120 :272-276, juin 2014. ISSN : 0090-3752. DOI : 10.1016/j.nds.2014.07.065. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0090375214005171> (visité le 05/04/2022).
- [109] C. PLAISIR, F. HANNACHI, F. GOBET, M. TARISIEN, M. M. ALÉONARD, V. MÉOT, G. GOSSELIN, P. MOREL et B. MORILLON. Measurement of the $^{85}\text{Rb}(\gamma, n)^{84\text{m}}\text{Rb}$ cross-section in the energy range 10-19 MeV with bremsstrahlung photons. en. *The European Physical Journal A*, 48(5) :68, 2012. ISSN : 1434-6001, 1434-601X. DOI : 10.1140/epja/i2012-12068-7. URL : <http://link.springer.com/10.1140/epja/i2012-12068-7> (visité le 05/04/2022).
- [110] J. GOLDEMBERG et L. KATZ. High Energy Gamma-Gamma Cross Section of ^{115}In . *Physical Review*, 90(2) :308-314, 1953. DOI : 10.1103/PhysRev.90.308. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.90.308> (visité le 13/05/2022). Publisher : American Physical Society.
- [111] W. TORNOW, M. BHIKE, S. W. FINCH, KRISHICHAYAN et A. P. TONCHEV. Measurement of the $^{115}\text{In}(,')^{115\text{m}}$ inelastic scattering cross section in the 1.8 to 3.7 MeV energy range with monoenergetic photon beams. *Physical Review C*, 98(6), 2018. DOI : <https://doi.org/10.1103/PhysRevC.98.064305>.
- [112] E. SIMON et M. DELARUE. Avancement des études de l'Interrogation Photonique Active (IPA). Français. Note Technique CEA, 2021.
- [113] H. BATEMAN. The solution of a system of differential equations occurring in the theory of radioactive transformations. English. *Proceedings of the Cambridge Philosophical Society*, 15 :423-427, 1910.
- [114] I. ESPAGNON, P.-G. ALLINEI, A.-C. SIMON, M. DELARUE et Y. PONTILLON. MAGIX, a new software for the analysis of complex gamma spectra. *Applied Radiation and Isotopes*, 191, janvier 2023.
- [115] A.-C. SIMON, J.-P. BOTH, I. ESPAGNON, J. LEFEVRE, V. PICAUD et A. PLUQUET. A new computer code for the determination of the isotopic composition of actinides by X- and gamma-ray spectrometry and its applications. In France, 2006.
- [116] A.-C. SIMON, F. CARREL, I. ESPAGNON, M. LEMERCIER et A. PLUQUET. Determination of Actinide Isotopic Composition : Performances of the IGA code on Plutonium Spectra according to the Experimental Setup. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 58(2), 2011.
- [117] P. LECONTE, J.-P. HUDELLOT et M. ANTONY. Accurate γ -ray spectrometry measurements of the half-life of ^{92}Sr . *Applied Radiation and Isotopes*, 66(10) :1450-1458, 2008.
- [118] M. DELARUE, E. SIMON, B. PÉROT, P. G. ALLINEI, N. ESTRE, D. ECK, E. PAYAN, I. ESPAGNON et J. COLLOT. New measurements of cumulative photofission yields of ^{239}Pu , ^{235}U and ^{238}U with a 17.5 MeV Bremsstrahlung photon beam and progress toward actinide differentiation. en. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 1040, 2022. DOI : 10.1016/j.nima.2022.167259.
- [119] O. O. PARLAG, V. T. MASLYUK, E. V. OLEJNIKOV, I. V. PYLYPCHYNETS et A. I. LENGYEL. Product yields for the photofission of ^{239}Pu with bremsstrahlung at 17.5 MeV boundary energy. *Problems of Atomic Science and Technology*, 136, 2021.
- [120] ANDRA. Waste classification. URL : <https://international.andra.fr/radioactive-waste-france/waste-classification> (visité le 10/06/2022).
- [121] J. H. HUBBEL et S. M. SELTZER. Tables of X-Ray Mass Attenuation Coefficients and Mass Energy-Absorption coefficients 1 keV to 20 MeV for Elements Z=1 to 92 and 48 Additional Substances of Dosimetric Interest. Rapport technique, National Institute of Standards et Technology, 1995.
- [122] C. CARASCO. Coupling gamma ray spectrometry and tomography in a Bayesian frame. en. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 990 :164985, 2021. ISSN : 0168-9002. DOI : 10.1016/j.nima.2020.164985. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900220313826> (visité le 29/07/2022).

- [123] A. VIVIER, R. FOTTORINO et B. ROUSSE. Seuil de décision et limite de détection : estimation, interprétation et optimisation. 1re partie : les principes de base. fr. *Radioprotection*, 45(3) :321-343, juillet 2010. ISSN : 0033-8451, 1769-700X. DOI : 10.1051/radiopro/2010011. URL : <https://www.radioprotection.org/articles/radiopro/abs/2010/03/rad201001/rad201001.html> (visité le 08/07/2022). Number : 3 Publisher : EDP Sciences.
- [124] B. PÉROT. *Optimisation des méthodes de mesure neutronique active pour les déchets radioactifs et contribution à la modélisation d'un dispositif industriel*. Français. Thèse de doctorat, Université Grenoble 1, 1996.
- [125] Groupe de travail de normalisation n°5 du Comité d'Instrumentation de Radioprotection G.T.N. 5. Détermination du seuil et de la limite de détection en spectrométrie gamma. Rapport technique CEA-R-5506, 1989. URL : https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/21/054/21054264.pdf (visité le 20/06/2022).
- [126] CEA/CAD/SGDC/GPM. Suivi de réalisation des conteneurs étalon type galettes compactées version ancienne et nouvelle presses MAT17 & MAT18. Rapport technique, 1995.
- [127] A. R. RENNIE, A. ENGBERG, O. ERIKSSON et R. M. DALGLIESH. Understanding neutron absorption and scattering in a polymer composite material. en. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 984 :164613, 2020. ISSN : 0168-9002. DOI : 10.1016/j.nima.2020.164613. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S016890022031010X> (visité le 29/06/2022).
- [128] M. DELARUE, E. SIMON, B. PÉROT, P.-G. ALLINEI, N. ESTRE, D. ECK, E. PAYAN, D. TISSEUR, O. GUETON, D. RICARD et J. COLLOT. Localization of nuclear materials in large concrete radioactive waste packages using photofission delayed gamma rays. en. *EPJ Web of Conferences*, 253, 2021. ISSN : 2100-014X. DOI : 10.1051/epjconf/202125308003. URL : https://www.epj-conferences.org/articles/epjconf/abs/2021/07/epjconf_animma2021_08003/epjconf_animma2021_08003.html (visité le 27/04/2022). Publisher : EDP Sciences.
- [129] L. TAMAGNO, C. ELEON, N. ESTRE, S. PLUMERI et D. TISSEUR. Atomic number reconstruction using multi-MeV X-ray DECT in concrete drums. In 2018.

Résumé

La caractérisation de la matière nucléaire dans les colis de déchets radioactifs présente un intérêt fort pour leur gestion, d'une part en termes de masse fissile pour les aspects de sûreté-criticité des transports, entreposages ou stockages, d'autre part en termes d'activité alpha à long terme pour les envoyer vers un exutoire approprié. L'Interrogation Photonique Active est étudiée dans cette thèse pour la caractérisation par photofission de colis bétonnés de 870 L dont le contenu en actinides ne peut être quantifié par d'autres mesures nucléaires non intrusives. L'enjeu est de réaliser une différenciation entre les actinides qui ont tous une section efficace de photofission similaire. Dans ce but, les taux de production cumulatifs des produits de photofission de l' ^{235}U , l' ^{238}U et du ^{239}Pu ont été mesurés. Une méthode de localisation des actinides dans une matrice en béton est également présentée ainsi que l'évaluation par simulation des limites de détection dans un colis 870 L.

Abstract

The characterization of the nuclear material content in radioactive waste packages is essential for their management. On the one hand, the fissile mass has to be evaluated for criticality and safety aspects of transport, storage or disposal. On the other hand, the long-term alpha activity has to be evaluated for sending them towards an appropriate final repository. Active Photon Interrogation is under development for the characterization of 870 L concrete packages whose actinide content cannot be quantified by other non-intrusive nuclear measurements. The challenge is to differentiate actinides that all have a similar photofission cross section. For this purpose, the cumulative yields of the photofission products of ^{235}U , ^{238}U and ^{239}Pu have been measured. A method for localizing actinides in a concrete matrix is also presented as well as the evaluation of the detection limits in 870 L waste drums with MCNP simulations.