



HAL
open science

Conception d'une sonde diagraphique neutronique dans le cadre de l'exploration et de l'exploitation minière de l'uranium

Valentin Fondement

► **To cite this version:**

Valentin Fondement. Conception d'une sonde diagraphique neutronique dans le cadre de l'exploration et de l'exploitation minière de l'uranium. Physique [physics]. Université Grenoble Alpes [2020-..], 2023. Français. NNT : 2023GRALY076 . tel-04583712

HAL Id: tel-04583712

<https://theses.hal.science/tel-04583712>

Submitted on 22 May 2024

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

Conception d'une sonde diagraphique neutronique dans le cadre de l'exploration et de l'exploitation minière de l'uranium.

Development of a neutron logging tool for uranium ore exploration and exploitation.

Présentée par :

Valentin FONDEMENT

Direction de thèse :

Johann COLLOT

Professeur, Université Grenoble Alpes

Directeur de thèse

Bertrand PEROT

Directeur de Recherche du CEA, HDR Université Grenoble Alpes

Co-directeur de thèse

Thomas MARCHAIS

Ingénieur-Chercheur CEA, Docteur Université Grenoble Alpes

Encadrant de thèse

Rapporteurs :

Jean-Claude ANGELIQUE

Professeur, ENSICAEN

Benoît GALL

Professeur, Université de Strasbourg

Thèse soutenue publiquement le **22 novembre 2023**, devant le jury composé de :

Elsa MERLE

Professeure, Université Grenoble Alpes / INP Grenoble

Présidente

Jean-Claude ANGELIQUE

Professeur, ENSICAEN

Rapporteur

Benoît GALL

Professeur, Université de Strasbourg

Rapporteur

Abdallah LYOUSSI

Professeur, Université Aix Marseille / INSTN

Examinateur

Invités :

Youcef BENSEDIK

Géophysicien, Ingénieur instrumentation radiométrie - Orano Mining

Hervé TOUBON

Ingénieur, Directeur R&D et Innovation Orano Mining



Remerciements

Je tiens à remercier ici, l'ensemble des personnes qui m'ont permis de réaliser ce doctorat et d'écrire ce manuscrit de thèse.

Un grand merci à **Elsa MERLE** d'avoir accepté de présider mon jury de soutenance de thèse. Je remercie également **Jean-Claude ANGÉLIQUE**, tant pour avoir été mon professeur à l'ENSICAEN, de m'avoir recommandé pour ce sujet de recherche, que d'avoir été rapporteur de mon manuscrit. Merci également à **Benoît GALL** d'avoir également endossé ce rôle, merci pour tes nombreuses suggestions et remarques. Je souhaite adresser un merci tout particulier à **Abdallah LYOUSSI** qui m'a fait l'honneur d'assurer le rôle d'examinateur en dernière minute, et qui a permis à ma soutenance de se dérouler sans encombre. Merci à tous les quatre pour votre vif intérêt, vos multiples questions et pistes d'investigation complémentaires.

Je tiens à remercier **Hervé TOUBON** d'avoir été dans mon jury de soutenance, mais aussi et surtout, merci d'avoir permis à ce sujet de recherche d'avoir existé, de m'avoir suivi pendant plus de 3 ans, et merci de m'avoir accordé ta confiance pour le porter. Merci à **Youcef BENSEDIK** d'avoir assuré l'encadrement industriel de ce doctorat, et pour tes échanges bénéfiques qui nous ont permis de cerner au mieux les besoins d'**Orano Mining**. Merci aux membres de leurs équipes avec qui j'ai eu la chance de collaborer, en particulier **Élodie WILLIARD**, **Sébastien HOCQUET** et **Romain MIESZKALSKI**. Merci à **Agnès GRANDJEAN** et **Christian SOREL** d'avoir successivement dirigé le projet NOPRA dans lequel s'inscrivent mes travaux.

Je n'aurais jamais pu réussir sans l'appui de mon équipe d'encadrement que je remercie chaleureusement. Un merci tout particulier à mes directeurs de thèse ; merci à **Johann COLLOT** d'avoir dirigé ma thèse depuis Grenoble, pour ton soutien, tes remarques, tes suggestions et ta disponibilité ces derniers mois. Un immense merci à **Bertrand PÉROT** pour avoir dirigé ma thèse au Laboratoire de Mesures Nucléaires. Merci pour ta bienveillance, ta pédagogie, ta patience, ta confiance, et ta générosité sans commune mesure !

Je tiens à adresser un remerciement spécial à **Thomas MARCHAIS**, en ta qualité d'encadrant de cette thèse, mais aussi pour ton amitié, construite au cours de ces dernières années. Merci pour ton énergie, ton soutien, ton sens de l'humour, et surtout pour ton positivisme à tout épreuve. Tu as été un véritable "pilier" pour moi ces dernières années, et le fait que tu aies été formé dans la meilleure école d'ingénieur au monde n'y est sûrement pas étranger !

Merci à l'extraordinaire **Christophe ROURE**, chef du Laboratoire de Mesures Nucléaires, de m'avoir accompagné si bien professionnellement que du point de vue personnel, et notamment sur "l'autoroute de l'amour". Merci beaucoup à **Joël LORIDON** pour ton aide précieuse en manip' et ton éternelle bonne humeur. Je souhaite adresser un remerciement particulier à **Christian PASSARD** pour son temps, tes conseils et sa contribution scientifique conséquente et ce, même si tu dit encore modestement n'avoir rien fait.

Je suis très reconnaissant envers **Mourad RAMDHANE**, **Stéphanie ROCCIA** et **Cyrille ELEON** pour avoir fait partie de mon Comité de Suivi Individualisé, à l'issue de mes 1^{ère} et 2^{ème} années de thèse. Merci pour votre temps, vos encouragements et vos précieuses suggestions.

J'adresse également tous mes remerciements à l'ensemble des collègues et ex-collègues du Laboratoire de Mesures Nucléaires que je n'ai pas déjà mentionné : **Pierre-Guy, Mehdi, Super-Sophie, Cédric, Éric, Vincent, Fred et Fred, Seb et Seb, Nicolas et Nicolas, Manu et Dani, Rodolphe et Monique, Bernard, Laurent, Marion, Alix, et Juan-Pablo.** Je n'oublie pas les nouveaux : **Benoît, Eric, Annelise, Justin, Vincent, Arthur, Enrica et Achment.** Ni les anciens : **David et David, Roberto, Quentin, Fanny, Maëva, Manon, Hervé, Patricia, Clotilde, Vincent, Éric, Pascal, Daniel, Guillaume, Damien, Léonie, Francis et ...Vincent !**

Je tiens à saluer et remercier les stagiaires, anciens et nouveaux, et autres alternants du laboratoire, force à vous : **Alan et Simon, Basile, Elliott, Jean, Van-Triet, Alexandre, Youssef, Luna et Kélian.**

J'ai souvent entendu que pour faire une bonne thèse il fallait 3 ingrédients : "un bon sujet, une bonne équipe d'encadrement et un bon candidat". À mon sens il serait juste d'en ajouter un 4^{ème} : "de bons camarades de pause café, de discussion et de rigolades en tout genre (c'est à dire de bons co-doctorants)". Alors un grand merci à **Geoffrey VARIGNIER**, au Dr. **Francisco SALVADOR BARBA** et à **Jérémy ROULT DIT ROUAUX**. Seul au tableau, on n'est jamais assez fort pour ce calcul, mais je vous emboîterai le pas avec conscience si nous sommes tous ensemble.

Je tiens à présent à remercier mes proches ; mes parents et grands-parents, mes amis, **Timothée** et **Jeanne**, mon frère et ma sœur dont je suis éminemment fier. Merci à vous tous de m'avoir permis de grandir dans un environnement sain, plein d'amour, de joie, de rires, mais aussi d'exigence et de respect. En bref, les ingrédients qui m'ont permis de m'épanouir en tant qu'enfant puis, de devenir un adulte accompli.

C'est à toi que ces vers sont adressés
Habitante de mon cœur prédestinée ?
Là, nous sortons à deux de ce récit,
On part démarrer une nouvelle vie !
Évidemment que je te remercie...

QLMDLO QNASLD

Table des matières

Introduction générale	1
1 Contexte et objectifs de la thèse	3
1.1 Introduction	4
1.1.1 Les mines historiques	4
1.1.2 Les mines ISL	5
1.1.3 Le conditionnement du minerai d'uranium	6
1.1.4 Le minerai d'uranium	7
1.1.5 Perméabilité et porosité	9
1.1.6 Les mesures nucléaires en puits de forage	10
1.2 Interrogation neutronique active en puits de forage	12
1.2.1 Sources de neutrons	13
1.2.2 Détecteurs usuels dans la prospection minière et pétrolière	15
1.2.3 Bloc de détection de neutrons épithermiques	17
1.2.4 Mesure de la teneur en uranium par détection des neutrons prompts de fission	19
1.2.5 Mesure PFN <i>in situ</i>	21
1.2.6 Mesure de la porosité hydrogène	24
1.3 Conclusion et apport de la thèse	27
2 Méthode de mesure conjointe de la teneur en uranium et de la porosité hydrogène	29
2.1 Introduction	30
2.2 Présentation de la géométrie de simulation	31
2.2.1 Paramètres liés à la simulation numérique	31
2.2.2 Géométrie de la sonde	31
2.2.3 Modélisation de l'environnement de mesure	35
2.2.4 Réduction de variance	38
2.3 Mesure conjointe de la porosité hydrogène et de la teneur en uranium	39
2.3.1 Mesure de la porosité hydrogène	39
2.3.2 Mesure de la teneur en uranium	43
2.3.3 Correction de la teneur en uranium par la porosité hydrogène	45
2.4 Étude paramétrique	46
2.4.1 Cadre de l'étude paramétrique	46
2.4.2 Effet du diamètre de tubage	47
2.4.3 Effet du plaquage de la sonde	48
2.4.4 Effet de l'épaisseur d'un tubage	50
2.4.5 Effet de l'épaisseur d'une gangue de boue ou d'une lame d'eau contre la paroi du puits	53
2.4.6 Effet de la salinité	56
2.4.7 Effet de la lithologie	60
2.4.8 Synthèse de l'influence des paramètres étudiés	64
2.4.9 Estimation des incertitudes de mesure	65
2.5 Conclusion	69

3	Validation expérimentale de la méthode de mesure conjointe et de son code de calcul	71
3.1	Introduction	72
3.2	Dispositifs expérimentaux	73
3.2.1	La casemate DANAÏDES	73
3.2.2	Les compteurs ^3He 30NH15 et 30NH15CS	75
3.2.3	Amplificateurs et carte de datation	79
3.2.4	Générateur de neutrons pulsé GENIE16 LL	83
3.3	Essais à fort taux de comptage pendant le tir du générateur D-T	88
3.3.1	Avant-Propos	88
3.3.2	Dispositif de mesure	89
3.3.3	Chaîne A : 30NH15 et G-ADSF10	92
3.3.4	Chaîne B : 30NH15CS et G-ADSF10	96
3.3.5	Chaîne C : 30NH15CS et ACH-NA98	101
3.3.6	Synthèse de l'étude des pertes à fort taux de comptage	106
3.4	Validation de la mesure PFN en fût d'étalonnage	109
3.4.1	Présentation du dispositif de mesure	109
3.4.2	Étude du bruit de fond	116
3.4.3	Mesures PFN	124
3.4.4	Mesures avec puits en eau	131
3.4.5	Estimation des limites de détection en puits de forage	136
3.5	Conclusion	142
	Conclusion générale	144
	Perspectives	148

Annexe A : Électronique des compteurs à ^3He	152
Annexe B : Principe de la mesure DFN (Delayed Fission Neutrons)	155
Annexe C : Calcul de la teneur en uranium utile au signal	156
Annexe D : Détermination de la porosité hydrogène par décroissance du signal PFN	158
Annexe E : Effet du remplissage des pores de la formation	160
Annexe F : Évolution du spectre neutronique au cours d'un cycle d'émission	163
Annexe G : Mesure de la teneur en uranium du sable de Fontainebleau par spectrométrie γ	166
Annexe H : Synthèse comparative entre la simulation et l'expérience, pour le puits en air et en eau	168
Bibliographie	170

Glossaire

- AMeN : Analyse des Mesures Neutroniques (logiciel interne du LMN)
- ACH-NA98 : Amplificateur de Charge Neutrons Actifs modèle 1998
- BDF : Bruit de Fond
- BDFA : Bruit de Fond Actif
- BFP : Bruit de Fond Passif
- CIME : Centre d'Innovation en Métallurgie Extractive, laboratoire d'ORANO Mining
- CEA : Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives
- CNL : *Compensated Neutron Tool* – sonde neutron compensée
- CPU : *Central Processing Unit* - unité centrale de calcul, ou processeur
- DANAÏDES : Casemate d'irradiation de l'ICPE TOTEM
- DDT : *Differential Die-away Technique* - technique de différentiation par constante de temps
- DES : Direction des Energies
- DEIN : ancien Département de l'Étude et Ingénierie Nucléaire
- DFN : *Delayed Fission Neutrons* – neutrons retardés de fission
- DRT : Direction de la Recherche Technologique
- D-T : fusion Deutérium - Tritium (^2H - ^3H)
- DTA : anciennement Direction des Techniques Avancées, nouvellement DRT depuis 2005
- DTN : Département de Technologie Nucléaire
- G-ADSF10 : Amplificateur Discriminateur à Seuil et Fenêtre série G (électronique nucléarisée)
- GT : isolation à Gaz, Télécommandé : version avec un isolateur à gaz (SF_6) et un pilotage à distance du MEN du GENIE16
- HI : *Hydrogen Index* - index d'hydrogène
- HN : *High-voltage (N) connector* - connecteur N (coaxial) adapté pour le transport de haute tension. Utilisé ici pour polariser les compteurs ^3He et transporter leurs signaux sortants.
- HSE : Hygiène Sécurité Environnement
- ICPE : Installation Classée pour la Protection de l'Environnement
- ICR : *Input Count Rate* - Taux de comptage incident (ici entrant dans une électronique d'acquisition et de traitement du signal)
- ICP-MS : *Inductively Coupled Plasma Mass Spectroscopy* - spectrométrie de masse à plasma à couplage inductif
- INA : Interrogation Neutronique Active
- IRESNE : Institut de REcherche sur les Systèmes Nucléaires pour la production d'Énergie bas carbone
- ISL : *In Situ Lixiviation* – Lixiviation *in situ*
- ISR : *In Situ Recovery* – Récupération *in situ*
- LD : Limite de Détection
- LL : *Long Life* - version longue durée de vie du MEN du GENIE16
- LMN : Laboratoire de Mesures Nucléaires
- MEDaS : *Multi-Event Datation System* - Système de datation multi-événement (carte d'acquisition)

- MCS - *Multi Channel Scaler* - carte multi-échelle. En interrogation neutronique pulsée, le spectre MCS est l'histogramme des coups mesurés en fonction de leur instant de détection par rapport au début de l'impulsion du générateur de neutrons.
- MEN : Module d'Émission Neutronique, partie du générateur contenant le tube à neutron.
- NIM : *Nuclear Instrumentation Module* - module d'instrumentation nucléaire
- OCR : *Output Count Rate* - Taux de comptage sortant (de l'électronique d'acquisition et de traitement du signal)
- PE : Polyéthylène
- PFN : *Prompt Fission Neutrons* – neutrons prompts de fission
- PHI : *Porosity Hydrogen Index* – porosité hydrogène
- PNG : *Pulsed Neutron Generator* – générateur de neutrons pulsé
- PROX : Boîtier de commande de PROXimité
- RMN : Résonance Magnétique Nucléaire
- SMTA : Service Mesures et modélisation des Transferts et Accidents graves
- THT : Très Haute Tension
- UGA : Université Grenoble Alpes

Lexique

- 30NH15CS : Compteur 30NH15 optimisé pour fonctionner avec un G-ADSF10 (CS, ou CCS pour collection de courant spéciale)
- *Bulk density* : densité apparente
- *Caliper* : diamètre
- *Cased hole* : puits tubé
- *Duty cycle* : taux de travail
- Flexibore[®] : marque déposée par Borflex[®], matériaux composé à 50 % de caoutchouc naturel et à 50 % de carbure de bore (B₄C).
- FM card : *Tally Multiplier* - option du code MCNP permettant de multiplier les résultats d'un estimateur (*tally*) par les sections efficaces associées d'un type de réaction donné.
- heure CPU : temps de calcul équivalent à un processeur pour réaliser seul l'opération
- *Monitoring* : contrôle à l'aide d'un moniteur (interne ou externe)
- *Mudcake* : gangue de boue compacte qui s'agglomère sur la paroi du puits lors du forage
- *Neutron decay* : décroissance du signal correspondant aux neutrons
- Neutron épithermique : neutron dont l'énergie est supérieure à 1.5 eV
- *Open hole* : puits ouvert, c'est à dire sans tubage
- ppm : partie par million massique (par exemple mg d'uranium par kg de minerai)
- *Quencher* : gaz de coupage
- *Roll-front* : front d'oxydo-réduction
- Sonde σ : outil permettant de mesurer le pouvoir d'absorption d'une formation géologique pour les neutrons thermiques (l'appellation « σ » vient de la section efficace macroscopique Σ)
- *Splitting* : séparation d'une particule en particules filles de poids statistique réduit pour accélérer la convergence d'un calcul Monte Carlo
- *Stacking* : superposition d'outils diagraphiques
- *Standoff* : espacement entre une sonde et le tubage ou la paroi du puits
- Taux de travail : Aussi appelé rapport cyclique, c'est la fraction de temps au cours de laquelle le MEN émet des neutrons. Un taux de travail de 10 % implique que les salves de neutrons durent un dixième du temps qui sépare le début de deux bouffées successives.
- Virole : pièce cylindrique creuse ou surface courbe d'un cylindre
- *Weight windows* : fenêtres d'importances

Table des figures

1.1	Mine à ciel ouvert de Mac Clean Lake au Canada	4
1.2	Schéma d'une coupe transversale de mine souterraine	5
1.3	Coupe transversale d'une mine ISL et exploitation d'un front d'oxydo-réduction	6
1.4	Phase de valorisation du minerai d'uranium	7
1.5	Abondance normalisée des éléments dans la croûte terrestre	8
1.6	Chaîne de décroissance de ^{238}U	9
1.7	Puits de forage tubé avec une sonde diagraphique neutron-neutron	11
1.8	Diagraphies en taux de comptage total pour deux vitesses de remontée différentes	12
1.9	Schéma de la structure interne d'un générateur de neutrons	14
1.10	Schéma d'émission neutronique pulsée	14
1.11	Sections efficaces de capture neutronique du Cd et du ^{10}B	17
1.12	Sections efficaces de capture neutronique de ^3He	18
1.13	Principe de fonctionnement de la mesure de teneur en uranium par détection de PFN	20
1.14	Effet de la porosité sur les signaux thermiques et épithermiques	21
1.15	Principe de fonctionnement d'une sonde diagraphique PFN	22
1.16	Plan en coupe du bloc de détection du <i>PFN logging tool</i>	23
1.17	Rayon d'interrogation d'une mesure de PFN en fonction de la porosité hydrogène, dans un puits de 121 mm de diamètre et avec une formation de silice complètement saturée en eau	23
1.18	Mesure de porosité hydrogène via la détection de neutrons épithermiques et avec deux détecteurs de neutrons thermiques	25
1.19	Principe de fonctionnement de la mesure de porosité hydrogène par une sonde diagraphique	26
1.20	Ratio des taux de comptage des détecteurs <i>near</i> et <i>far</i> lors d'une mesure de porosité hydrogène thermique entre différentes formations pour une sonde générique	27
2.1	Coupe transversale de la modélisation MCNP du MEN16 GT	32
2.2	Coupe transversale de la modélisation MCNP du bloc de détection	33
2.3	Coupe transversale d'une géométrie de simulation proche de la référence	35
2.4	Correction de la teneur en uranium conventionnelle de matrices sèches de SiO_2 et CaCO_3 en fonction de la porosité hydrogène pour obtenir la teneur simulée utile au signal	38
2.5	Visualisations en coupes des éléments de volume de la simulation selon leur importance	39
2.6	Fenêtre d'intégration w_H pour la mesure de porosité hydrogène	40
2.7	Comparaison des chronogrammes de neutrons rétrodiffusés avec et sans bibliothèques photo-nucléaires	41
2.8	Mesure de porosité hydrogène épithermique avec un seul détecteur	42
2.9	Mesure PFN de la teneur en uranium	43
2.10	Évolution du comptage PFN en fonction de la porosité hydrogène et de la teneur en uranium	44
2.11	Évolution du coefficient d'étalonnage CE_{PFN} en fonction de la porosité hydrogène	45
2.12	Effet du diamètre de tubage sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_H	47
2.13	Effet du diamètre de tubage sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_{PFN}	48
2.14	Effet de l'espacement sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_H	49
2.15	Effet de l'espacement sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_{PFN}	49
2.16	Effet de l'épaisseur d'un tubage PVC sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_H	51

2.17	Effet de l'épaisseur d'un tubage PVC sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_{PFN}	51
2.18	Effet de l'épaisseur d'un tubage acier (316L) sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_H	52
2.19	Effet de l'épaisseur d'un tubage acier (316L) sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_{PFN}	53
2.20	Effet de l'épaisseur d'un <i>mudcake</i> de densité 1.6 sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_H	54
2.21	Effet de l'épaisseur d'un <i>mudcake</i> de densité 1.6 sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_{PFN}	54
2.22	Effet de l'épaisseur d'une lame d'eau interstitielle sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_H	55
2.23	Effet de l'épaisseur d'une lame d'eau interstitielle sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_{PFN}	56
2.24	Effet de la salinité de l'eau du puits sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_H	57
2.25	Effet de la salinité de l'eau du puits sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_{PFN}	57
2.26	Effet de la salinité de l'eau dans le puits et les pores sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_H	58
2.27	Effet de la salinité de l'eau dans le puits et les pores sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_{PFN}	59
2.28	Effet d'une matrice CaCO_3 sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_H	60
2.29	Effet d'une matrice CaCO_3 sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_{PFN}	61
2.30	Effet du gadolinium sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_H	62
2.31	Effet du gadolinium sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_{PFN}	63
2.32	Effet du gadolinium sur un chronogramme neutronique	63
2.33	Évaluation de la précision de la formule 2.5 pour déterminer la porosité hydrogène avec l'ensemble du jeu de données	66
2.34	Évaluation de la précision de la formule 2.5 pour déterminer la porosité hydrogène avec une fraction du jeu de données	66
2.35	Évaluation de la précision de la formule 2.6 pour déterminer la teneur en uranium avec l'ensemble du jeu de données	67
2.36	Évaluation de la précision de la formule 2.6 pour déterminer la teneur en uranium avec une fraction du jeu de données	68
3.1	Vue en coupe horizontale de la casemate DANAÏDES	73
3.2	Vue en coupe horizontale et verticale de la casemate DANAÏDES	74
3.3	Comparaison d'un compteur $^{30}\text{Nh15}$ et de son modèle MCNP réalisé via MCNPX-ViSED, et nomenclature des compteurs proportionnels de CANBERRA	75
3.4	Évolution du taux de comptage en fonction de la tension appliquée à un compteur proportionnel $^{30}\text{NH15}$ couplé à un amplificateur G-ADSF10	76
3.5	Évolution du taux de comptage en fonction de la valeur absolue du seuil de discrimination appliqué à un compteur proportionnel $^{30}\text{NH15}$ couplé à un amplificateur G-ADSF10	77
3.6	Évolution du taux de comptage en fonction de la tension appliquée à un compteur proportionnel $^{30}\text{NH15CS}$ couplé à un amplificateur G-ADSF10	77
3.7	Évolution du taux de comptage en fonction de la valeur absolue du seuil de discrimination appliqué à un compteur proportionnel $^{30}\text{NH15CS}$ couplé à un amplificateur G-ADSF10	78
3.8	Photographie d'un amplificateur G-ADSF10 dans un châssis <i>NIM</i>	79

3.9	Acquisition à l'oscilloscope du signal analogique en sortie d'un amplificateur G-ADSF10 correspondant à une capture de neutron dans un compteur à ^3He de type 30NH15CS	80
3.10	Photographie d'un préamplificateur ACH-NA98	80
3.11	Acquisition à l'oscilloscope du signal analogique d'un amplificateur ACH-NA98 correspondant à une capture de neutron dans le compteur à ^3He de type 30NH15CS	81
3.12	Carte d'acquisition MEDaS 64 voies	81
3.13	Acquisition à l'oscilloscope du signal correspondant à un tir de $800\ \mu\text{s}$ du GENIE16	82
3.14	Comparaison des modèles de Module d'Émission Neutronique simulés avec MCNP	84
3.15	Étalonnage du moniteur externe pour monitorer l'émission neutronique moyenne lors de la campagne expérimentale de 2021	86
3.16	Étalonnage du moniteur externe pour monitorer l'émission neutronique moyenne lors de la campagne expérimentale de 2022-2023	87
3.17	Évolution du taux de travail effectif en fonction de la période de répétition de l'émission neutronique	88
3.18	Photographie du dispositif de mesure de la campagne de 2021	89
3.19	Modèle du dispositif expérimental de la campagne de mesure de 2021	90
3.20	Chronogrammes neutroniques mesurés par la chaîne A pour différentes émissions instantanées	93
3.21	Chronogrammes neutroniques mesurés par la chaîne A, normalisés par le moniteur externe pour différentes émission instantanées	94
3.22	Évolution des taux de comptages sortants de la chaîne A en fonction du taux instantané d'impulsions incidentes produites dans le compteur ^3He	95
3.23	Chronogramme neutronique représentant la moyenne d'une salve unique du générateur pour différentes durées de tir mesuré par la chaîne A	95
3.24	Chronogrammes neutroniques mesurés par la chaîne B, normalisés par le moniteur externe pour différentes émissions instantanées	97
3.25	Évolution des taux de comptage sortants de la chaîne B en fonction du taux instantané d'impulsions incidentes dans le compteur ^3He	98
3.26	Chronogramme neutronique représentant la moyenne d'une salve unique du générateur pour différentes durées de tir mesuré par la chaîne B	99
3.27	Chronogramme neutronique représentant la moyenne d'une salve unique de $50\ \mu\text{s}$ du générateur mesuré par la chaîne B pour différentes émissions instantanées	100
3.28	Évolution des taux de comptages sortants de la chaîne B en fonction du taux instantané d'impulsions incidentes et de la longueur de tir	101
3.29	Chronogrammes neutroniques mesurés par la chaîne C pour différentes émissions instantanées, normalisés par le moniteur externe	103
3.30	Évolution des taux de comptage sortants de la chaîne C en fonction du taux instantané d'impulsions incidentes dans le compteur ^3He	103
3.31	Chronogrammes neutroniques représentant la moyenne d'une salve unique du générateur pour différentes durées de tir mesuré par la chaîne C	104
3.32	Chronogrammes neutroniques représentant la moyenne d'une salve unique de $50\ \mu\text{s}$ du générateur mesuré par la chaîne C pour différentes émission instantanées	105
3.33	Évolution des taux de comptages sortants de la chaîne B en fonction du taux instantané d'impulsions incidentes et de la longueur de tir	106
3.34	Évolution des pertes de comptages liées au temps mort en fonction de la durée d'émission neutronique, pour les trois chaînes de mesure	107
3.35	Comparaison des chronogrammes neutroniques mesurés par les trois chaînes de mesure pour une émission moyenne de $9 \times 10^7\ \text{s}^{-1}$ et des durées de tir de $800\ \mu\text{s}$ ou $100\ \mu\text{s}$	107

3.36	Évolution des taux de comptages sortants des trois chaînes en fonction du taux instantané d'impulsions incidentes dans le compteur ^3He	108
3.37	« Tonneau des DANAÏDES » en cours d'assemblage dans les installations de FO-SELEV	110
3.38	Bloc de détection de la campagne de mesure 2022-2023, vue en coupe et photographie du bloc tel que réalisé puis monté	111
3.39	Photographies du « Tonneau des DANAÏDES » en vue de côté et du dessus, avec superposition du modèle MCNP	113
3.40	Photographies représentant les 3 positions possibles du fourreau d'instrumentation et le support bloquant du module d'émission neutronique	113
3.41	Chronogrammes neutroniques mesurés par la chaîne B sur 7200 secondes à 500 Hz pour différents taux d'émission neutronique moyenne, normalisés par le moniteur externe	114
3.42	Évolution des taux de comptages sortant de la chaîne de mesure en fonction du taux instantané d'impulsions produites dans le compteur ^3He	115
3.43	Comparaison d'un chronogramme neutronique simulé par MCNP et d'une acquisition expérimentale	117
3.44	Comparaison des chronogrammes neutroniques simulés par MCNP pour vérifier les hypothèses expliquant l'amplitude mesurée de bruit de fond actif	118
3.45	Modèle numérique MCNP pour le calcul de taux de réaction d'activation de ^{17}O dans le « Tonneau des DANAÏDES »	121
3.46	Représentations du réseau de sources secondaires permettant le calcul de contribution au bruit de fond actif de l'activation de ^{17}O	122
3.47	Comparaison des chronogrammes neutroniques simulés par MCNP du bruit de fond actif simulé produit par activation de ^{17}O et de la mesure	123
3.48	Coupes transversale et horizontale de la géométrie de référence pour la mesure PFN en statique	124
3.49	Comparaison des chronogrammes neutroniques simulés par MCNP, et mesurés expérimentalement avec et sans uranium	125
3.50	Comparaison des chronogrammes neutroniques simulés par MCNP, en tenant compte des absorbants neutroniques, et mesurés expérimentalement, avec et sans uranium	127
3.51	Comparaison de l'évolution des taux de comptage en fonction de la position verticale de la plaquette d'uranium	129
3.52	Comparaison de l'évolution des taux de comptage en fonction de la position verticale recalée de la plaquette d'uranium	129
3.53	Comparaison de l'évolution des taux de comptage en fonction de la position verticale de la plaquette d'uranium en tenant compte des absorbants neutroniques dans le sable	130
3.54	Comparaison des chronogrammes neutroniques simulés sans uranium, avec et sans eau dans le puits central du dispositif de mesure	131
3.55	Comparaison des chronogrammes neutroniques mesurés sans uranium normalisés, avec et sans eau dans le puits central du dispositif de mesure	132
3.56	Comparaison des chronogrammes neutroniques mesurés après le tir du générateur, normalisés, avec et sans eau dans le puits central du dispositif de mesure	133
3.57	Comparaison des chronogrammes neutroniques simulés, avec uranium, avec et sans eau dans le puits central du dispositif de mesure	134
3.58	Comparaison des chronogrammes neutroniques mesurés avec uranium, normalisés, avec et sans eau dans le puits central du dispositif de mesure	135
3.59	Illustration des concepts de seuil de décision et de limite de détection	137

3.60	Modèle numérique MCNP pour le calcul de taux de réaction d'activation de l' ^{17}O dans un puits de forage, avec une matrice homogène de silice de porosité hydrogène 0 %	139
3.61	Modèle numérique MCNP pour le calcul de taux de réaction d'activation de l' ^{17}O dans un puits de forage, avec une matrice homogène de silice de porosité hydrogène 40 %	139
A.1	Spectre d'amplitude théorique des impulsions engendrées par un compteur proportionnel à ^3He	152
A.2	Spectre d'amplitude et sensibilité au rayonnement γ avec un amplificateur G.ADSF.10 à collection de courant	153
A.3	Spectre d'amplitude et sensibilité au rayonnement γ avec un amplificateur ACH en collection de charge	154
A.4	Propriétés des principaux groupes d'émission de neutrons retardés de fission	155
A.5	Influence de la porosité hydrogène sur la décroissance du signal PFN	158
A.6	Influence de la porosité hydrogène sur la constante de décroissance du signal PFN	159
A.7	Effet sur le comptage dans la fenêtre w_H du remplissage par de l'air ou de l'eau des pores d'une formation de silice SiO_2 de porosité volumique 40 %	160
A.8	Effet sur le comptage dans la fenêtre w_{PFN} du remplissage par de l'air ou de l'eau des pores d'une formation de silice SiO_2 de porosité volumique 40 %	162
A.9	Spectres en énergie des neutrons à 4 instants différents après le début de l'impulsion	164
A.10	Chronogramme neutronique du taux de comptage mesuré par le compteur	165
A.11	Cumul du signal neutron intégré sur l'impulsion, en fonction du seuil en énergie	165
A.12	Photographie de l'enceinte de mesure de spectrométrie γ bas bruit de fond	166
A.13	Spectre γ d'un échantillon de sable de Fontainebleau	167
A.14	Chronogrammes neutroniques des mesures et simulations avec uranium, avec le puits en air et en eau	168

Liste des tableaux

2.1	Sections efficaces de capture radiative (n,γ) à 25 meV des éléments constitutifs des tubages	50
2.2	Sections efficaces macroscopiques de capture radiative et totales à 25 meV, 1 eV et 14 MeV des matrices de Silice et de Calcite	61
2.3	Récapitulatif des paramètres d'influence sur la porosité hydrogène et sur la teneur en uranium mesurées, avec les écarts relatifs sur les grandeurs recherchées pour les valeurs extrêmes étudiées	64
3.1	Modélisation du béton de DANAÏDES, murs, plafond et sol	75
3.2	Étude des pertes de comptage liées à l'émission neutronique du GENIE16 en mode émission continue pour le chaîne de mesure A	92
3.3	Étude des pertes de comptage liées à l'émission neutronique du GENIE16 en mode pulsée de la chaîne de mesure A pour différentes durées de tir	96
3.4	Étude des pertes de comptage liées à l'émission neutronique du GENIE16 en mode émission continue pour le chaîne de mesure B	96
3.5	Étude des pertes de comptage liées à l'émission neutronique du GENIE16 en mode pulsée de la chaîne de mesure B pour différentes durées de tir	99
3.6	Étude des pertes de comptage liées à l'émission neutronique du GENIE16 en mode émission continue pour le chaîne de mesure C	102
3.7	Étude des pertes de comptage liées à l'émission neutronique du GENIE16 en mode pulsée de la chaîne de mesure C pour différentes durées de tir	105
3.8	Mesures de bruit de fond passif	116
3.9	Comparaison du nombre de coups attendus ou mesuré entre 1000 et 2000 μs après le début de la séquence de tir	119
3.10	Rapports d'embranchements de la désexcitation de $^{17}O^*$	120
3.11	Comparaison expérience/calcul des comptages observés sur la zone d'intérêt lors de la mesure de la plaquette en uranium en position statique	126
3.12	Résultat d'analyse destructive des absorbants neutroniques retrouvés dans le sable de l'expérience	127
3.13	Comparaison expérience/calcul des comptages observés sur la zone d'intérêt lors de la mesure de la plaquette en uranium en position statique en tenant compte des absorbants neutroniques dans le sable	128
3.14	Récapitulatif des estimations de contribution au bruit de fond actif, du signal correspondant à l'activation de ^{17}O	140
3.15	Calcul des limites de détection pour des temps de mesure de 4 s et 180 s, dans une formation homogène de silice avec une porosité hydrogène de 0 ou 40 % . . .	140
3.16	Calcul des teneurs en uranium minimum mesurable pour des temps de mesure de 4 s et 180 s, dans une formation homogène de silice avec une porosité hydrogène de 0 ou 40 %	141
A.1	Synthèse comparative des mesures et expériences avec puits en eau et en air . . .	169

Introduction générale

L'année 2022 marque un tournant historique dans la politique énergétique de la France. Le plan d'investissement « France 2030 » exposé à Belfort le 10 février 2022 présente l'ambition gouvernementale de préparer le pays aux enjeux énergétiques et écologiques de demain [1]. La relance du nucléaire, par la construction et le développement de nouveaux réacteurs dans les prochaines années, est appuyée par des financements et des objectifs clairs tels que la décarbonation des industries, le développement de la filière hydrogène ou la démocratisation des véhicules électriques et hybrides. Les semaines qui suivirent ont été marquées par l'invasion de l'Ukraine par la Russie et par un changement radical de la politique d'importation énergétique de l'Union Européenne. La souveraineté énergétique de la France et de ses partenaires commerciaux est aujourd'hui un enjeu stratégique majeur, la filière nucléaire française en est, de fait, un acteur de premier plan.

Orano Mining fait partie des trois premiers producteurs d'uranium naturel au monde, avec Kazatomprom et Cameco, et a produit 6814 tonnes en 2021 [2]. Bien que disposant de mines à ciel ouvert ou souterraines (Niger, Canada), Orano produit aussi du minerai par lixiviation *in situ* (ISL, *In Situ Leaching* – voir partie 1.1.2). Cette technique représente 66 % de la production mondiale en 2021 et demeure en augmentation. Le suivi de production des mines ISL comme celles de KATCO au Kazakhstan permet à la fois un ajustement de la production par rapport aux fluctuations boursières du prix de l'uranium, mais aussi une estimation des ressources restantes dans le gisement.

Cette thèse s'inscrit dans le cadre d'une collaboration initiée en 2014 entre ORANO Mining et le Laboratoire de Mesures Nucléaires (LMN) du CEA de Cadarache sur la prospection et l'exploitation minière de l'uranium. Ces deux problématiques requièrent l'utilisation de techniques de mesures nucléaires sur échantillon, ou directement dans la mine en embarquant ces techniques dans des sondes diagraphiques. La thèse fait suite à des travaux antérieurs au Laboratoire de mesures Nucléaires de l'institut CEA/DES/IRESNE [3], dédiés aux mesures sur échantillon en spectrométrie γ . Ces derniers ont par ailleurs montré la possibilité de déterminer la teneur en uranium à l'aide de détecteurs de spectrométrie γ faiblement résolus (scintillateurs NaI). Cette mesure n'est cependant pas exploitable dans le cas de faibles teneurs et lorsque il y a un déséquilibre des chaînes de filiation de l'uranium. Cette situation est rencontrée fréquemment dans les formations géologiques du Kazakhstan en raison de la lixiviation différentielle des espèces chimiques comme l'uranium et le radium.

Un autre aspect motivant les travaux de recherche de cette thèse est l'importance de la perméabilité des formations rocheuses sédimentaires (de type grès ou sables) des mines ISL. Cette grandeur pétrophysique est particulièrement importante dans l'exploitation de ce type de gisement. La thèse porte sur le développement d'un nouvel outil diagraphique (et sur ses méthodes associées), se reposant sur l'interrogation neutronique active, afin de coupler une mesure de la teneur en uranium indépendante de tout déséquilibre des chaînes de filiation et une mesure de la porosité de la roche (porosité hydrogène), permettant aux compagnies minières de déterminer la perméabilité des formations géologiques.

La littérature scientifique traitant des mesures de porosité hydrogène et des mesures de teneur en uranium présente généralement des modèles de sondes diagraphiques à plusieurs détecteurs ^3He fonctionnant sur le principe de ratio de comptages. La méthode conjointe de mesure proposée dans ces travaux de recherche repose au contraire sur un seul détecteur de neutrons. Ce compteur à ^3He est entouré de polyéthylène et blindé avec du cadmium, pour ne pas être sensible aux neutrons du générateur. En effet, ces derniers deviennent thermiques entre les impulsions en raison des diffusions élastiques sur les noyaux d'hydrogène de l'environnement de mesure. Les neutrons émis pendant une impulsion sont en partie rétrodiffusés et thermalisés par le milieu géologique, le compteur ^3He mesure alors un signal dont le nombre de coups est inversement proportionnel à la concentration en noyaux d'hydrogène autour de la sonde.

Quelques centaines de microsecondes après une impulsion du générateur, la totalité des neutrons émis par ce-dernier est thermalisée. Des fissions sont alors induites sur les noyaux d'uranium 235, chacune d'entre elle produisant entre 2 et 3 neutrons prompts avec une énergie moyenne de 2.2 MeV. Les seuls neutrons franchissant le blindage cadmium dans cette fenêtre de temps sont issus de fissions induites (et non plus du générateur). La décroissance du nombre de neutrons thermiques dans l'environnement de mesure, et donc le nombre de fissions produites, dépend cependant fortement des noyaux absorbants présents dans le milieu (dont l'hydrogène). Il est donc nécessaire de prendre en compte la porosité hydrogène précédemment mesurée pour pouvoir calculer la teneur en uranium à partir du comptage réalisé entre deux impulsions de neutrons. Un brevet a été déposé [4] sur ce dispositif original basé sur l'utilisation d'un seul détecteur à ^3He et sur la combinaison des deux mesures.

Dans le premier chapitre, nous développerons les enjeux industriels et nous présenterons les grandeurs géophysiques d'intérêt. Les sources et détecteurs usuels, constituants élémentaires des sondes diagraphiques seront également présentés, ainsi que les techniques historiques de mesure de la teneur en uranium et de la porosité hydrogène.

Dans le deuxième chapitre nous présenterons la méthode innovante de mesure conjointe de la teneur en uranium et de la porosité hydrogène développée pendant ces travaux de thèse. Ce chapitre présentera les résultats des simulations réalisées avec MCNP6.1 [5]) montrant la faisabilité théorique de la méthode conjointe, mais également l'influence des nombreux paramètres environnementaux pouvant affecter l'interprétation des mesures réalisées.

Dans le troisième et dernier chapitre, nous présenterons les travaux expérimentaux réalisées au cours de cette thèse. Dans un premier temps nous montrerons une étude à fort taux de comptage [6] qui nous a permis de caractériser 3 chaînes d'acquisition et d'identifier la plus adéquate pour mettre en application la méthode de mesure conjointe présentée dans le deuxième chapitre. Nous présenterons finalement l'étude réalisée avec une sonde maquette et un fût d'étalonnage se rapprochant d'un puits de forage, établissant une preuve de concept de la méthode de mesure conjointe. Cette campagne de mesure a validé les résultats du code MCNP, mais a également permis de caractériser le bruit de fond actif mesuré [7]. Ceci permet d'établir une première estimation des limites de détection en puits de forage pour la mesure de teneur en uranium.

Chapitre 1 :

Contexte et objectifs de la thèse

1.1 Introduction

1.1.1 Les mines historiques

Découvert à la fin du XVIII^e siècle, l'uranium n'est exploité à l'échelle industrielle qu'à partir des années 1940. Les techniques d'exploitation de ce minerai s'inscrivent historiquement dans la continuité de l'industrie des métaux et du charbon [8].

Les mines à ciel ouvert sont possibles lorsque le gisement est peu profond (jusqu'à quelques dizaines de mètres) par rapport à la surface ou paroi accessible. Le sol est alors creusé et les minerais d'intérêt séparés des autres roches et sédiments. Des explosifs peuvent être utilisés pour accéder à certaines zones. Cette méthode nécessite de déplacer de grandes quantités de matière et d'effectuer le tri *a posteriori*. Par ailleurs, des émanations de gaz radioactifs, comme le radon, peuvent avoir lieu. Les fluides ruisselant sur les zones exploitées peuvent se charger d'éléments toxiques pour la faune et la flore environnantes. Néanmoins, les ressources humaines travaillant sur ces mines ne sont pas soumises aux contraintes et risques que présentent les excavations en profondeur. De par son accessibilité, c'est la première méthode d'extraction historique du minerai d'uranium.



FIGURE 1.1 – Mine à ciel ouvert de Mac Clean Lake au Canada [9]

Les gisements souterrains sont exploités lorsque l'extraction et le stockage de toute la matière superflue deviennent trop cher et/ou contraignant. Une cavité est alors creusée pour permettre aux opérateurs et à la matière extraite de circuler de la surface aux zones riches en minerai. Une séparation grossière est effectuée au plus proche du gisement et les matières d'intérêt sont extraites une fois à la surface. Ce type d'exploitation représente de nombreuses contraintes liées principalement aux risques du travail souterrain. De multiples dispositifs doivent être alors mis en place pour pallier différents dangers tels que l'anoxie (c'est à dire le manque d'oxygène), l'effondrement, l'incendie, l'inondation. La place de la radioprotection devient également essentielle dans ce type d'exploitation du minerai d'uranium. Deux des plus importantes exploitations minières de minerai d'uranium sont souterraines comme la mine de Mac Arthur River au Canada et la mine d'Olympic Dam en Australie [10].

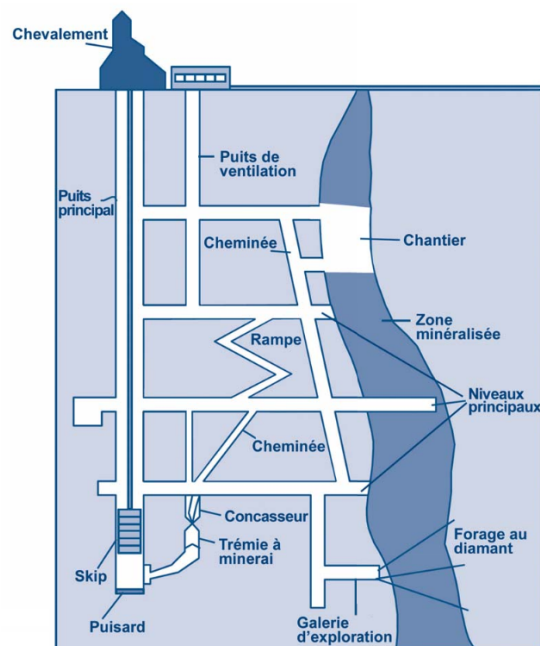


FIGURE 1.2 – Schéma d'une coupe transversale de mine souterraine [11]

1.1.2 Les mines ISL

la lixiviation est la dissolution en milieu aqueux d'éléments solubles pour l'extraction d'une substance d'intérêt, comme ici l'uranium. Ce dernier est soluble sous forme oxydée mais reste peu soluble lorsque le pH est neutre. En présence de peu de carbonates, qui en se dissolvant augmentent le pH, il est moins coûteux de baisser le pH que de l'augmenter car l'acide sulfurique est peu cher. L'uranium possède 2 principales valence 4^+ (uraninite UO_2) et 6^+ (ion UO_2^{2+}). Pour dissoudre un minerai d'uranium de valence 4^+ il va falloir également l'oxyder, ce qui se fait naturellement par réduction du Fe^{3+} naturellement présent dans les mines du Kazakhstan. Cette technique fait ses débuts dans les années 1960 pour l'extraction de l'uranium, dans un premier temps dans les mines souterraines épuisées, et finalement, à partir des années 1990, depuis la surface. Aujourd'hui ce sont environ les deux tiers de la production mondiale qui proviennent de ce type d'exploitation. La lixiviation *in situ* (ISL, ou ISR pour *In Situ Recovery*) permet aussi l'exploitation de gisements sédimentaires sous forme de fronts d'oxydo-réduction (*roll-front*) qui constituent la majeure partie des réserves mondiales à bas coût d'extraction. Ce type de gisement est illustré sur la partie droite de la figure 1.3 et se forme entre des strates argileuses imperméables. L'uranium présent dans la strate est alors drainé par les eaux souterraines et va précipiter le long d'un front d'oxydo-réduction au contact d'éléments carbonés.

La figure 1.3 présente le principe de fonctionnement de la lixiviation *in situ* :

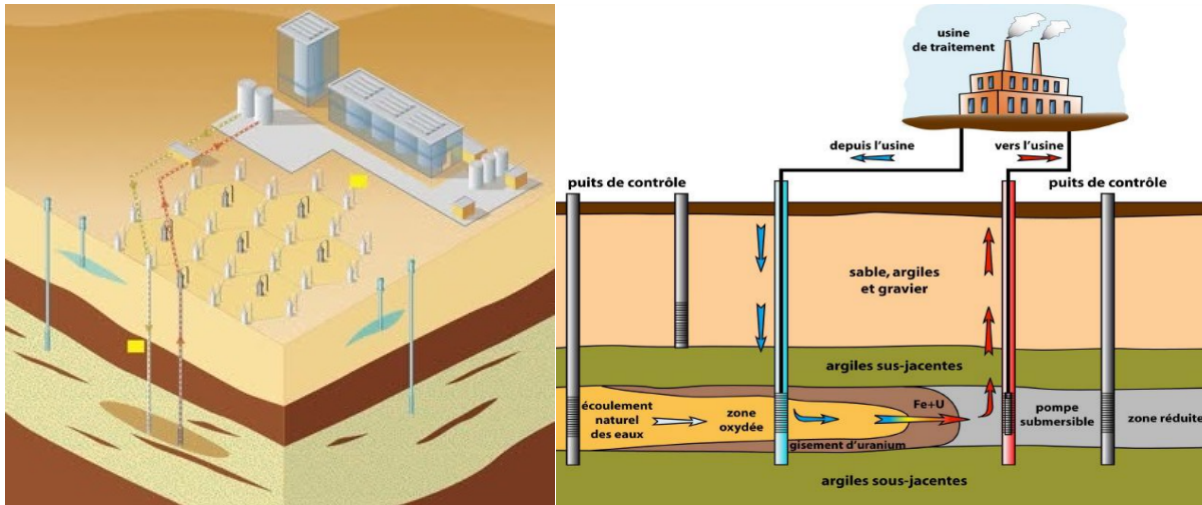


FIGURE 1.3 – Coupe transversale d'une mine ISL (à gauche) et exploitation d'un front d'oxydo-réduction (*roll-front*, à droite) [2, 3, 12]

Un minimum de deux puits est nécessaire afin de récupérer l'uranium dissous. Les systèmes de purification et de mise en condition du minerai restent, quant à eux, à la surface. Les puits d'injection et d'extraction peuvent être disposés en rangées successives ou en formant des maillages géométriques. Sur la figure 1.3, la coupe transversale de gauche montre une configuration « 7 spot » où les puits forment un maillage hexagonal : le forage au centre de chaque hexagone (collecteur) permet de faire remonter la solution lixiviée vers l'usine de traitement. Ce type de configuration permet de produire plus vite par unité de surface [12].

1.1.3 Le conditionnement du minerai d'uranium

L'extraction n'est pas la seule étape dans le traitement du minerai. Il faut le séparer de son milieu, puis le mettre en condition afin d'être exporté et de poursuivre son cycle de combustible nucléaire.

La figure 1.4 récapitule les différentes étapes de valorisation du minerai d'uranium, de l'extraction à l'acheminement. Les techniques d'extraction « mécanique » comme les mines à ciel ouvert et/ou souterraines nécessitent des étapes de concassage/broyage, puis une lixiviation en tas : les produits de broyage sont d'abord empilés, des jus acidifiés sont ensuite versés directement sur la pile de matière à traiter. L'ISL a l'avantage de ne nécessiter aucune des deux étapes précédentes, la lixiviation ayant déjà eu lieu lors de leur extraction « chimique ». Afin de diminuer les coûts de transport, l'uranium était originellement transporté sous forme de poudre jaune appelée *yellowcake* (diuranate de sodium $\text{Na}_2\text{U}_2\text{O}_7$). Aujourd'hui, il est plutôt conditionné en octaoxyde de triuranium U_3O_8 qu'il est conditionné, particulièrement pour sa stabilité et sa faible solubilité dans l'eau. Cette poudre ne représente pas un risque radiologique élevé par irradiation externe en raison du faible nombre de rayonnements γ émis, mais un fort risque par contamination interne à cause de sa toxicité chimique, supérieure à sa toxicité radiologique [13].

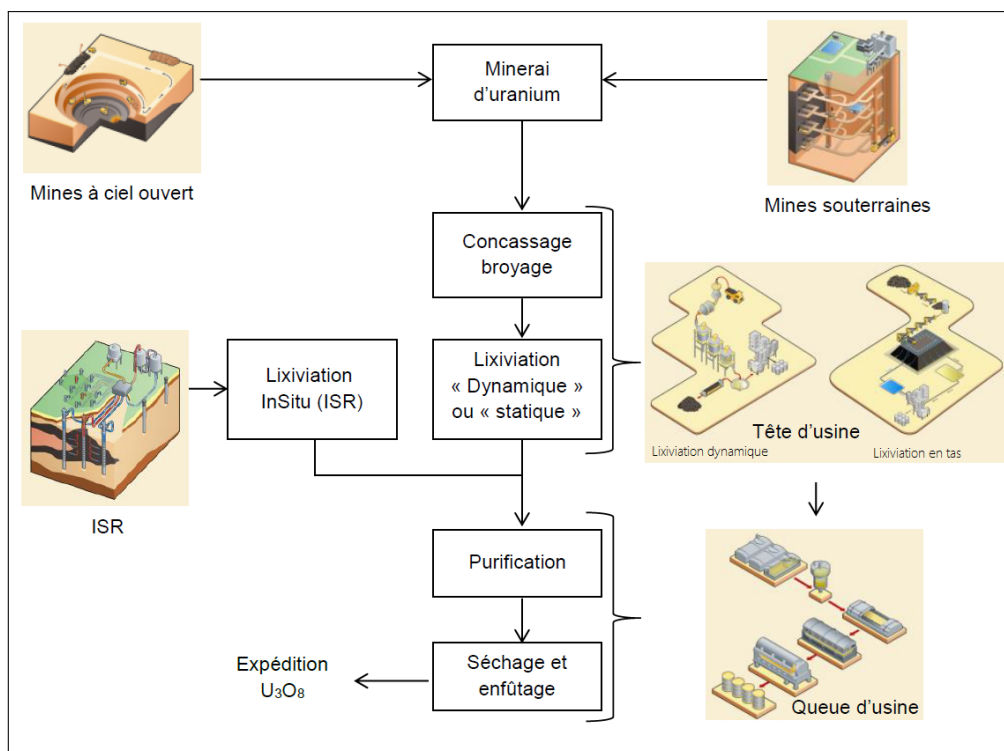


FIGURE 1.4 – Phase de valorisation du minerai d'uranium [2, 3]

1.1.4 Le minerai d'uranium

La teneur massique, ou abondance en uranium, est un élément crucial concernant sa prospection. Elle est en général exprimée en partie par million (ppm_U), pourcentage massique qui correspond à des mg d'uranium par kg de minerai.

L'uranium (sous forme U_3O_8) se vendait en mars 2023 à hauteur d'environ $100 \text{ \$.kg}^{-1}$. On estime aujourd'hui que l'extraction de l'uranium est rentable pour un coût d'exploitation inférieur à $130 \text{ \$.kg}^{-1}$ de minerai. Ces chiffres semblent indiquer un manque à gagner pour l'industrie de l'uranium, mais c'est sans tenir compte des fluctuations brutales du cours de ce dernier : $140 \text{ \$.kg}^{-1}$ en avril 2022, $160 \text{ \$.kg}^{-1}$ en octobre 2023. La relative flexibilité d'exploitation des mines permet également d'étaler les coûts dans le temps. Le coût de la majorité des exploitations se trouve actuellement en dessous de cette limite [10] de rentabilité prospective, elles sont donc très rentables. L'Agence Internationale de l'Energie Atomique (AIEA) prévoit l'existence de plus de six millions de tonnes de minerai dont le coût d'exploitation serait inférieur à $130 \text{ \$.kg}^{-1}$, ce qui couvrirait les demandes actuelles pour une centaine d'années. En outre, près de deux siècles de consommation seraient possibles avec les ressources (seize millions de tonnes) dont le coût d'exploitation est estimé entre 130 et $200 \text{ \$.kg}^{-1}$. Ces réserves estimées augmentent chaque année grâce aux opérations de prospection et aux innovations technologiques. Un des critères essentiels sur lesquels s'appuient les prospecteurs miniers est le coût estimé d'extraction. En effet, une mine d'uranium n'est exploitée que si celle-ci est rentable.

L'eau de mer contient également de l'uranium à hauteur de 3.3 ppb_U , ce qui constitue une réserve globale estimée à environ 4 milliards de tonnes, représentant une réserve de plusieurs millénaires. Actuellement le coût d'extraction de telles ressources est estimé à $1230 \text{ \$.kg}^{-1}$ [14], soit près de dix fois les coûts de production actuels. À l'instar des hydrocarbures, les ressources totales sont moins limitantes que les coûts de production. Des alternatives comme l'utilisation du thorium, plus abondant que l'uranium (voir figure 1.5), sont également envisagées.

La figure 1.5 montre que l'uranium est le 48^{ème} élément naturel le plus abondant de la croûte terrestre. Il est plus représenté que certains métaux rares tels que l'or et l'argent : on en trouve une teneur de 2 ppm_U en moyenne dans l'écorce terrestre. On le trouve dans les gisements uranifères où son abondance varie de quelques centaines de ppm_U jusqu'à atteindre plus de 10⁵ ppm_U, soit 10 % massiques. Par exemple, on peut mesurer des pépites dépassant les 50 % d'abondance massique au Canada.

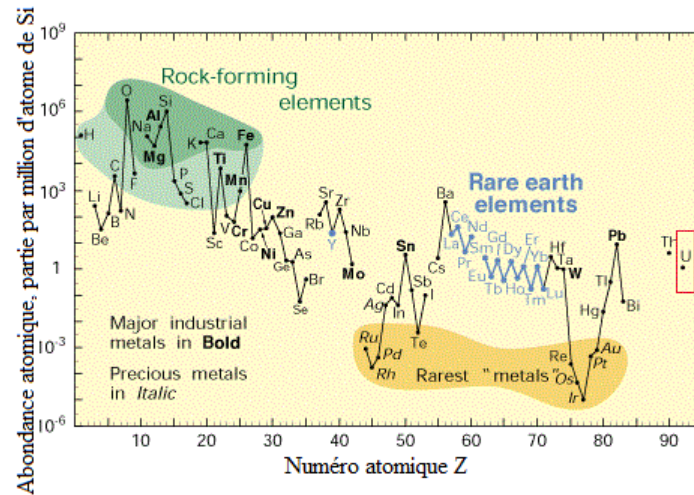
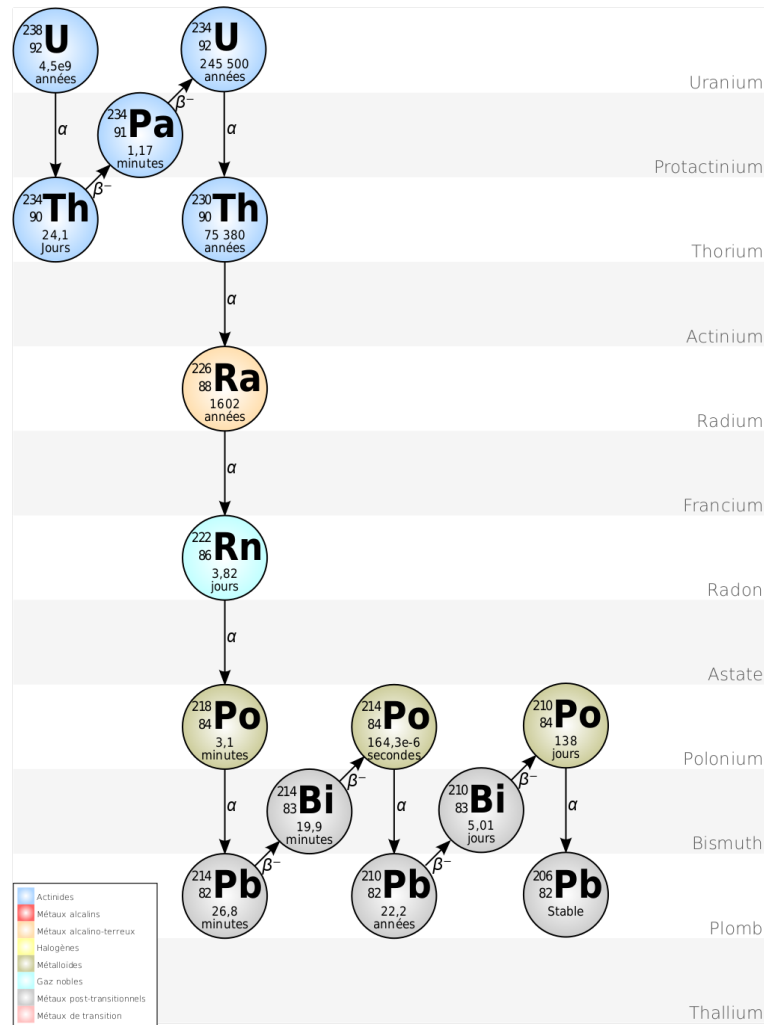


FIGURE 1.5 – Abondance normalisée au Si (ppm atomique) des éléments dans la croûte terrestre [15]

L'uranium est un élément radioactif, par conséquent, les mesures passives basées sur la détection de ses rayonnements γ émis spontanément sont exploitables lors de sa prospection. On peut également utiliser des mesures actives d'interrogation neutronique basées sur la détection de rayonnements induits, sujet d'étude de cette thèse de doctorat. La chaîne de décroissance de l'²³⁸U est présentée sur la figure 1.6. L'²³⁸U représente 99.27 % (massique) de l'uranium naturel et la fin de sa chaîne de décroissance (isotopes du bismuth et du plomb 214) est à l'origine de l'écrasante majorité des émissions γ émises par ce dernier. La période de décroissance de l'²³⁸U est bien plus grande que celle de chacun de ses descendants. Le rapport entre la concentration des différents descendants et ce dernier devient alors égal au rapport de leurs demi-vies. Lorsque les activités des isotopes de la chaîne deviennent constantes au cours du temps (il y a autant de noyaux produits que de noyaux qui se désintègrent), on parle d'équilibre séculaire. Celui-ci n'est atteint qu'au bout d'environ 6 périodes de l'isotope de plus longue période radioactive après l'²³⁸U, à savoir l'²³⁴U (245 000 ans). Cet équilibre de la chaîne peut cependant être rompu si la concentration de certains descendants est modifiée.

Ce déséquilibre peut être issu de traitements chimiques ou physiques sur le minerai durant sa phase d'exploitation, ou résultant d'aléas géochimiques. Les forages entraînent le plus souvent un échappement du radon, gaz noble très volatil initialement piégé dans le gisement, cassant alors la chaîne de filiation en deux parties. Le taux d'évaporation du radon devient alors un paramètre important pour pouvoir calculer la teneur en uranium à partir du signal émis par les éléments du bas de la chaîne. De plus, les gisements de type *roll-front* présentent des caractéristiques favorables à la migration des éléments fils de l'uranium. Ces derniers ayant des propriétés chimiques différentes, leur mobilité dans l'eau et les roches du milieu s'en trouvent alors changées, les éléments de la chaîne migrant alors à des vitesses différentes de celle de l'uranium, comme notamment le radium [16]. L'uranium peut alors se retrouver éloigné de ses fils de bas de chaîne, de quelques dizaines de centimètres pour les gisements consolidés, mais jusqu'à plusieurs dizaines de mètres pour les sables du Kazakhstan.

FIGURE 1.6 – Chaîne de décroissance de l' ^{238}U [17]

1.1.5 Perméabilité et porosité

En géologie, la perméabilité désigne l'aptitude d'un milieu à se laisser traverser par un fluide (liquide ou gaz) [18]. Cette grandeur est importante en hydrogéologie, pour l'exploitation gazière et pétrolière, mais aussi dans le cas des mines ISL car elle régit la dynamique de circulation des différents fluides entre les différentes formations et strates géologiques. Idéalement, la strate géologique contenant le gisement doit être plus perméable que les couches sur et sous-jacentes [19]. Pour être perméable, un matériau doit être obligatoirement poreux, l'inverse n'étant pas forcément vrai (exemple des argiles).

La porosité réelle (ou porosité intrinsèque) d'une roche¹ est définie comme étant le rapport du volume des pores (ou volume de vide contenus dans la roche), sur le volume total (en %). Nous parlerons ici de porosité réelle Φ , définie par l'équation (1.1) :

$$\Phi = \frac{V_{\text{fluide}}}{V_{\text{formation}}} \times 100 \quad (1.1)$$

1. Une roche, au sens géologique du terme, peut désigner du sable consolidé ou non, qui est, de fait, une roche sédimentaire à forte porosité réelle.

Le fluide de saturation peut être de l'air ou un autre gaz comme l'argon, le CO₂ ou le gaz naturel. Dans le cas des mines ISL, descendant sous le niveau des nappes phréatiques, les pores se retrouvent saturés en eau. Quand les pores sont complètement remplis par un fluide, la roche est dite saturée à 100 %, c'est l'hypothèse que l'on fait pour les milieux sableux qui ont une bonne perméabilité. En effet, les pores entre les grains sont interconnectés ; ce qui permet aux fluides de circuler librement et à l'eau de remplacer les différents gaz.

Il est possible de mesurer la porosité par l'intermédiaire de l'eau qui occupe les pores de la formation, par exemple par résonance magnétique nucléaire (RMN) [20] ou avec la rétrodiffusion neutronique [21]. L'oxygène représente plus de la moitié des éléments de la formation (SiO₂, CaCO₃), c'est donc plutôt la teneur en hydrogène, appelée aussi index d'hydrogène, qui nous renseigne sur le volume des pores. On parle alors de porosité mesurée à l'index d'hydrogène (*Hydrogen Index*), ou HI dans la littérature [22]. Par abus de langage, Φ est devenue la notation pour la porosité associée à la mesure d'index .

La porosité hydrogène est le résultat de la mesure de l'index d'hydrogène par un outil donné. Elle fournit une information relative sur la porosité réelle. Par convention, nous désignerons la porosité réelle par Φ , et la porosité hydrogène, plus spécifique à l'outil utilisé, sera notée Φ_H . La lecture de Φ_H dépend de l'outil utilisé, de son étalonnage, des propriétés de la formation (lithologie) ou de la qualité du fluide de saturation (par exemple la salinité). L'étalonnage standard des outils de mesure de porosité est généralement réalisé dans une lithologie de type calcaire. La valeur de porosité hydrogène Φ_H lue par un outil étalonné calcaire est égale à la valeur de porosité réelle uniquement si la roche investiguée est de type calcaire et ses pores saturés à 100 % en eau douce. Si le fluide de saturation est différent de la configuration d'étalonnage (eau fortement salée) ou si la saturation n'est pas totale (par exemple : 50 % air, 50 % eau), alors la valeur de porosité hydrogène Φ_H mesurée ne correspond plus à la porosité réelle de la roche. L'outil diagraphique peut mesurer un nombre de coups supérieur à la valeur d'étalonnage à 0 % de porosité, la porosité hydrogène Φ_H , ou porosité apparente, est alors lue comme négative. Ces valeurs aberrantes doivent être interprétées correctement par des géologues.

Il est possible de déterminer la perméabilité d'un milieu à partir des mesures de porosité hydrogène couplées à des mesures de résistivité électrique, de densité. Les géologues peuvent alors utiliser des modèles hydrogéologiques, pour déterminer la perméabilité de la roche.

1.1.6 Les mesures nucléaires en puits de forage

Traditionnellement, les puits de forage des mines ISL ont un diamètre compris entre 80 et 800 mm. Le trou peut être ouvert (*open hole*), c'est-à-dire que les roches à l'intérieur sont laissées apparentes. Dans ce cas, le forage finit par se remplir de boue. Il peut également être décidé de protéger les parois avec de l'acier ou du PVC ; on dit alors que le forage est tubé (*cased hole*), ce qui permet d'éviter que le puits ne s'effondre ou ne se colmate.

Sur la figure 1.7, on peut voir que l'eau peut toujours s'infiltrer entre la paroi et le tubage ; on parlera d'espace annulaire pour décrire ce volume. Lors de l'opération de forage, les contraintes physiques compressent les matériaux en périphérie du puits, formant une gangue de boue compacte (*mudcake*) de plusieurs millimètres d'épaisseur. Lorsque le diamètre de la sonde diagraphique est inférieur à celui du puits, il est possible de la plaquer mécaniquement contre une paroi en utilisant un bras excentreur, appelé aussi diamètreur (*caliper*).

En cas de mesure dans un puits ouvert, des effondrements locaux peuvent faire fluctuer le diamètre de façon significative, il est alors possible de mesurer l'évolution de ce dernier grâce à cet instrument. Finalement, lorsque la sonde n'est pas parfaitement plaquée, ou en l'absence de *caliper*, on appelle écartement (*standoff*) la distance séparant cette dernière du tubage ou de la paroi la plus proche. Certains forages ont un pendage (plan d'inclinaison) non nul, la sonde se plaque alors sur la paroi du fait de son poids. On peut alors considérer que le *standoff* vaut zéro même en absence de *caliper*.

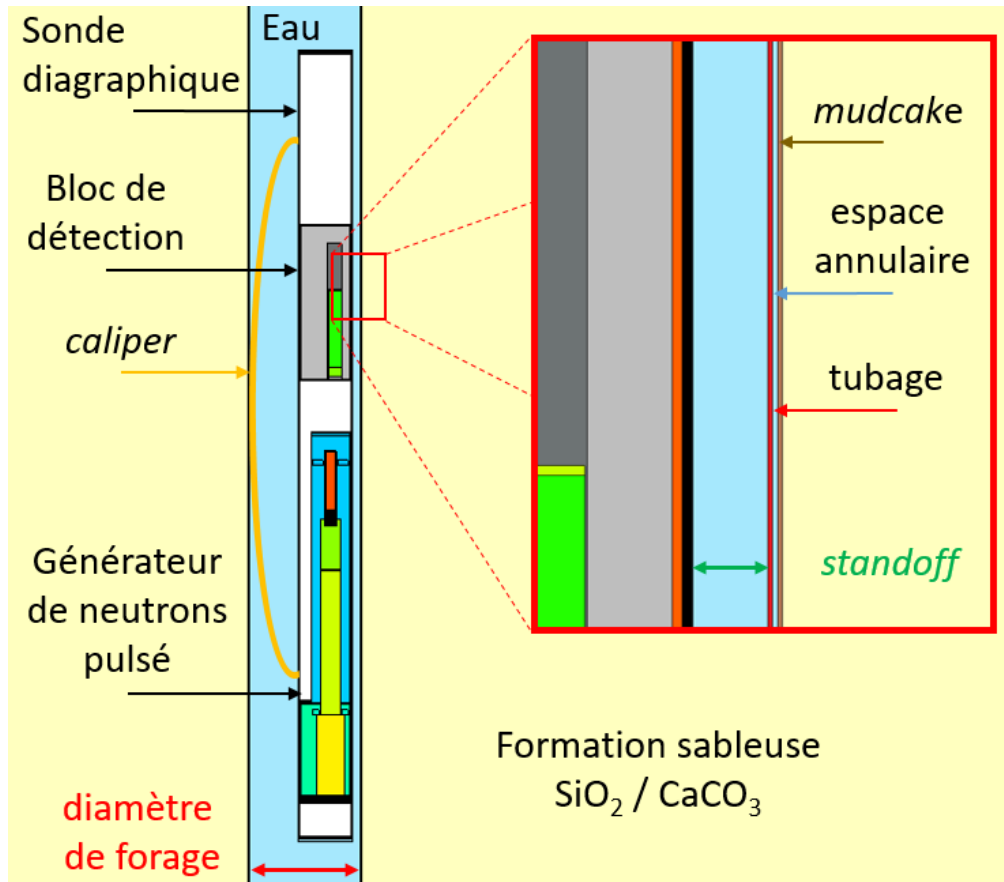


FIGURE 1.7 – Puits de forage tubé avec une sonde diagraphique neutron-neutron (MCNPX-ViSED [23])

Remarque : Les mines ISL de minerai d'uranium peuvent faire quelques centaines de mètres de profondeur, mais certaines diagraphies sont réalisées sur plusieurs kilomètres dans les forages de l'industrie pétrolière. Des différences de température entre le fond (jusqu'à environ 80 °C) et la surface peuvent affecter l'instrumentation au cours de la mesure. L'augmentation de la température de l'³He dans les compteurs contribue à augmenter son efficacité [24], mais l'électronique embarquée dans la sonde peut en revanche s'avérer moins performante.

Le principe d'enregistrement continu d'une grandeur physique en fonction de la profondeur est appelé diagraphie. C'est aussi le nom donné au résultat de cette mesure (voir figure 1.8). Concrètement, la sonde est descendue à l'aide d'un treuil au fond du puits, elle est ensuite remontée à vitesse constante, sur des portions de puits ou sur la totalité de la profondeur, selon les besoins. Le treuil est mécaniquement limité à une vitesse nominale, en général de l'ordre de 3 m.min⁻¹. Il est également possible de faire des mesures en statique, par exemple pour se réétalonner au fond du puits.

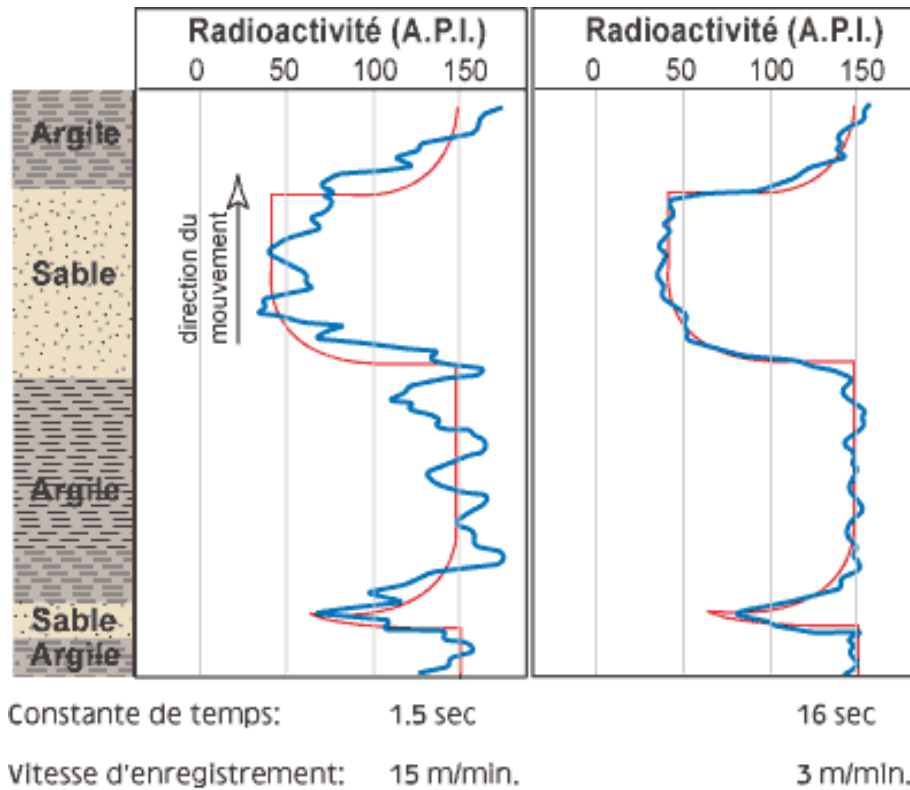


FIGURE 1.8 – Diagraphies en taux de comptage total pour deux vitesses de remontée différentes [25]

La figure 1.8 montre une diagraphie de mesure de radioactivité en comptage γ total. Cette dernière a été réalisée à 2 vitesses différentes. On constate que les fluctuations, d'origine principalement statistique, sont plus importantes pour une vitesse de remontée rapide. Une mesure lente se rapproche quant à elle fortement des valeurs théoriques attendues (courbe en rouge). Le Laboratoire de Mesures Nucléaires (LMN) a travaillé en partenariat avec ORANO Mines sur l'optimisation de sondes γ NGRS [26, 27, 28] et KOBRA [29] qui reposent sur cette technique.

De nombreuses mesures [25] peuvent être réalisées ainsi : mesure PFN (voir partie 1.2.5), mesure de porosité hydrogène (voir partie 1.2.6), mesures de diamètre du puits, d'induction, de résistivité, de radioactivité, de densité, etc... D'autres procédés, comme l'imagerie optique, l'échographie et le radar en forage, peuvent également être utilisés. C'est le couplage de ces mesures qui permet aux géologues d'avoir une idée précise de la géologie sans recourir systématiquement à des mesures en laboratoire après prélèvement d'échantillons.

1.2 Interrogation neutronique active en puits de forage

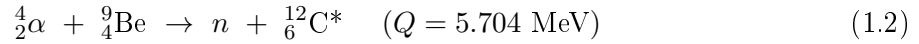
L'Interrogation Neutronique Active (INA) est une technique permettant d'interroger un volume de matériau d'intérêt par l'intermédiaire de neutrons [30, 31]. Ces derniers peuvent être émis en continu ou par impulsions, par l'intermédiaire de sources naturelles ou artificielles. C'est en détectant les particules issues des interactions entre les neutrons incidents et les noyaux de la zone d'intérêt que l'on parvient à caractériser cette dernière. Dans le cadre de la prospection minière de l'uranium, le nombre de neutrons naturellement issus de la décroissance de l'uranium présent dans l'environnement géologique est trop faible pour réaliser des mesures passives. Il faut donc utiliser des mesures neutroniques actives.

1.2.1 Sources de neutrons

Il existe deux types de sources de neutrons usuellement utilisées en INA ;

- Les sources radioactives

Ces sources sont également appelées « chimiques » dans la littérature de la prospection minière et pétrolière. Elles sont la plupart du temps composées d'un émetteur α et de béryllium afin d'induire la réaction (α, n) suivante :



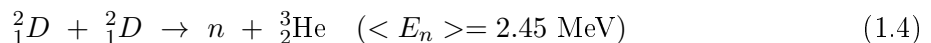
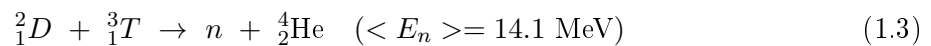
Traditionnellement, les sources radioactives d'AmBe (et dans une moindre mesure de PuBe) sont utilisées pour plusieurs raisons : d'abord le faible coût de l' ${}^{241}\text{Am}$ et la possibilité d'en produire avec une grande pureté [32]. De plus, la période radioactive de ce dernier est suffisamment longue ($T_{\frac{1}{2}} = 433$ ans) devant la durée d'exploitation des sources pour garantir la stabilité de son émission. Enfin, l'émission neutronique de l'AmBe est importante (de l'ordre de $2.66 \times 10^6 \text{ n.s}^{-1}$ dans 4π par Ci d' ${}^{241}\text{Am}$ [32]), ce qui permet d'utiliser des sources compactes dans les sondes diagraphiques avec une activité permettant des temps de mesure raisonnables.

L'énergie moyenne des neutrons émis par les sources d'AmBe est d'environ 4.5 MeV. Ces dernières présentent un spectre complexe qui peut fluctuer en fonction de la fabrication de la source. A l'inverse, il existe aussi des sources émettrices de neutrons par fission spontanée comme le ${}^{252}\text{Cf}$ qui a un spectre en énergie plus simple : une distribution de Maxwell avec une énergie moyenne de 2.3 MeV. Cependant, bien que cette source présente une très bonne activité spécifique de $4.635 \times 10^9 \text{ n.s}^{-1}.\text{Ci}^{-1}$ [33], cet isotope est onéreux à produire et a une période radioactive insuffisante ($T_{\frac{1}{2}} = 2.645$ ans) pour les applications minières.

En pratique, l'activité des sources neutrons utilisées en prospection peut atteindre plusieurs curies (Ci) d' ${}^{241}\text{Am}$, ce qui constitue de fait une contrainte radiologique importante lors des manipulations opérationnelles et des transports. La perte de telles sources, lors de leur utilisation dans un puits de forage, constitue un risque radio-biologique et environnemental majeur. Le durcissement des normes HSE (Hygiène Sécurité Environnement) en vigueur dans les différents pays producteurs de minerais et d'hydrocarbures rend l'utilisation de ces sources radioactives de plus en plus difficile [34].

- Les générateurs de neutrons

Ces sources sont des accélérateurs compacts permettant de produire un flux de neutrons intense et mono-énergétique. L'émission neutronique n'est effective que lors du fonctionnement du générateur, ce qui présente un avantage déterminant en termes de radioprotection. Elle peut être continue ou sous forme d'impulsions contrôlées par l'utilisateur. Il existe deux types de générateurs basés sur deux réactions nucléaires distinctes :



Ces réactions de fusion sont communément appelées D-T et D-D, elles correspondent respectivement aux équations (1.3) et (1.4). Les neutrons ainsi produits sont émis de façon quasi isotrope, avec une légère direction privilégiée selon l'axe du faisceau accéléré, mais qui en pratique est négligeable. La réaction D-T est la plus utilisée malgré la contrainte liée à la gestion du tritium car sa section efficace, et donc la production de neutrons, est de 50 à 100 fois supérieure [35] à celle de la réaction D-D. La figure 1.9 montre le fonctionnement de tels générateurs.

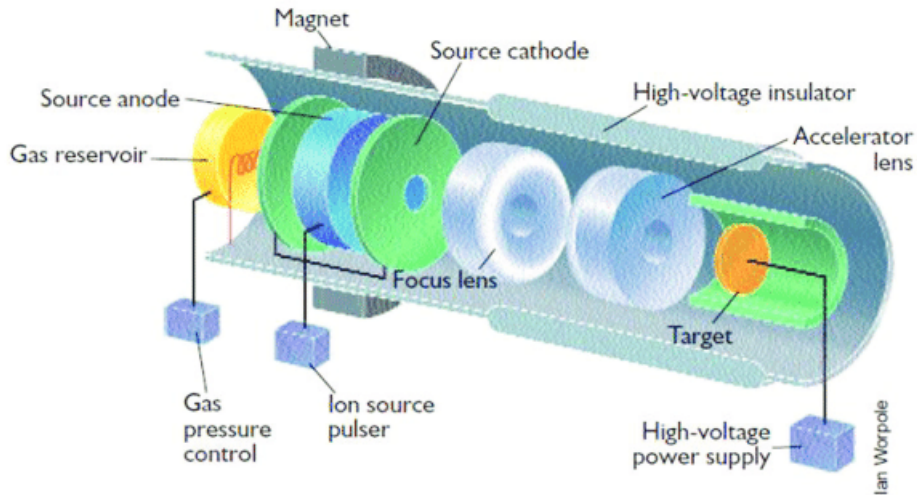


FIGURE 1.9 – Schéma de la structure interne d'un générateur de neutrons [35]

Des molécules de di-deutérium sous forme gazeuse sont ionisées puis accélérées par impulsions jusqu'à atteindre 75 keV par ion, selon la tension accélératrice appliquée. Il s'ensuit une réaction sur la cible en hydrure de titane (l'hydrogène ayant une isotopie deutérium ou tritium). Il est également possible d'accélérer des molécules de deutérium-tritium pour réimplanter ce dernier dans la cible et ainsi augmenter sa durée de vie. Cette dernière se mesure en centaines d'heures d'utilisation, l'émission nominale diminuant progressivement avec le temps. Les générateurs les plus robustes peuvent ainsi émettre pendant plus de 2000 h.

Les émissions neutroniques moyennes des générateurs utilisés en prospection minière sont de l'ordre de 10^8 s^{-1} pour ceux reposant sur la réaction D-T et de l'ordre de 10^7 s^{-1} pour ceux reposant sur la réaction D-D. Il existe des générateurs D-T pouvant atteindre les 10^{10} s^{-1} [36] mais leur diamètre n'est pas encore adapté à tous les types de sondes et de forages ($> 10 \text{ cm}$).

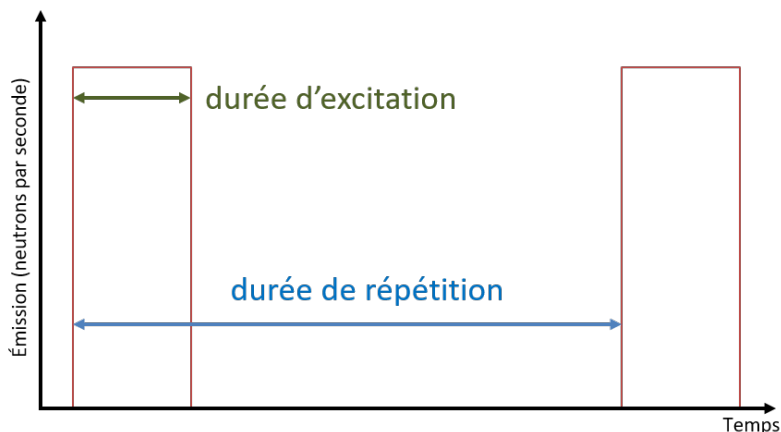


FIGURE 1.10 – Schéma d'émission neutronique pulsée

La figure 1.10 montre un cycle représentatif du mode impulsion. Des neutrons sont émis pendant une période appelée durée d'excitation et il faut attendre une certaine durée de répétition avant l'impulsion suivante. Le rapport entre ces durées d'excitation et de répétition définit un taux de travail (*duty cycle*), représentant la proportion du temps où sont émis les neutrons : pour une émission neutronique moyenne donnée, plus le taux de travail est faible, plus les impulsions sont intenses.

Un taux de travail inférieur à celui spécifié par le constructeur, généralement entre 1 % et 10 %, peut détériorer le tube et raccourcir sa durée de vie. L'émission neutronique pendant l'impulsion correspond à l'émission moyenne divisée par le taux de travail. Par exemple, un générateur D-T avec une émission neutronique moyenne de 10^8 s^{-1} et un taux de travail de 1 % a une émission instantanée de 10^{10} s^{-1} pendant l'impulsion.

Les générateurs de neutrons peuvent émettre des impulsions de quelques μs avec des fréquences allant jusqu'à plusieurs kHz [36]. Certains d'entre eux sont en mesure d'émettre des séquences précises ou de moduler leur émission de façon continue en suivant une consigne extérieure. Les générateurs nécessitent une alimentation en haute tension de l'ordre de 100 kV. Des techniques comme la détection de neutrons prompts de fission (PFN, abordée en partie 1.2.4) requièrent impérativement l'usage de sources pulsées tandis que d'autres (activation par les neutrons rapides avec la technique de la particule associée [37]) imposent un fonctionnement en continu. Les émissions sont souvent plus importantes qu'avec les sources radioactives, permettant des temps de mesure plus courts tout en permettant d'éviter certaines des contraintes radiologiques associées aux sources radioactives comme les blindages biologiques pour le transport et le stockage. Les générateurs D-T contiennent cependant de fortes activités de tritium (de l'ordre de 10^{10} Bq) mais sont scellés, ce qui simplifie leur gestion (transports notamment). L'inconvénient majeur des générateurs de neutrons reste leur prix, pouvant atteindre plusieurs centaines de milliers d'euros.

1.2.2 Détecteurs usuels dans la prospection minière et pétrolière

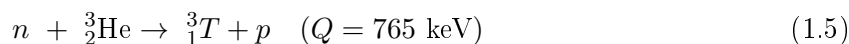
En prospection, il est usuel de faire du comptage neutronique pour différentes techniques de mesure reposant sur l'interrogation neutronique active (PFN, mesure de porosité hydrogène, sondes Σ sur les propriétés d'absorption neutroniques liées à la lithologie [38]). Il existe deux familles de détecteurs sensibles aux neutrons qui sont utilisés dans ce domaine :

- Les compteurs proportionnels gazeux

Ce sont les détecteurs les plus couramment utilisés car ils sont robustes, peu sensibles aux rayonnements γ émis ou induits par les sources de neutrons. Ils ont une très grande sensibilité pour les neutrons thermiques, avec une section efficace d'absorption de l' ^3He de 5327 b à 0.025 eV [39]. Ce type de détecteur est néanmoins très onéreux depuis les attentats du 11 septembre 2001, passant de moins de 100 $\text{\$}\cdot\text{l}^{-1}$ à plus de 2000 $\text{\$}\cdot\text{l}^{-1}$ en 2010. En effet, l' ^3He est une ressource rare, notamment un produit de la décroissance du tritium des armes nucléaires, et il est très utilisé notamment pour les portiques radiologiques et pour la détection des matières nucléaires.

Remarque : des compteurs gazeux à BF_3 ont également été utilisés par le passé. Ils sont moins efficaces (pression limitée à moins de 1 bar en raison de la grande toxicité de ce gaz) mais beaucoup moins chers. Leur usage a cependant été abandonné au cours du temps pour des raisons de toxicité. Les compteurs gazeux à dépôt de bore, non toxiques, présentent une trop faible sensibilité par rapport à ceux à ^3He [40] (efficacité de détection pour les neutrons thermiques environ 2 à 3 fois plus faible à dimensions égales).

La réaction (1.5) se produit dans les compteurs à gaz d' ^3He :



La réaction (1.5) libère 765 keV se répartissant entre le triton et le proton en voie de sortie. Ces particules chargées sont à l'origine de l'ionisation du gaz du compteur, créant ainsi le signal de détection. La composition exacte du gaz de remplissage est un secret de fabrication. Des additifs (ou gaz dopants) comme l'argon ou le CO₂ sont ajoutés dans certains compteurs, et il existe des mélanges optimisés pour leur permettre de fonctionner avec un rayonnement γ ambiant important (pertes de comptage $< 5\%$ pour 0.5 Gy.h⁻¹ de débit de dose). Dans ce cas de figure, le flux de particules γ est susceptible d'engendrer un fort taux de comptage d'impulsions de faible amplitude. Les additifs jouent alors un rôle de *quencher*, permettant d'accélérer la vitesse de collection des charges et donc de raccourcir les impulsions. Cela limite significativement la probabilité d'empilement des impulsions et permet, *in fine*, de mieux discriminer les impulsions neutroniques et γ [39].

Le signal doit ensuite être mis en forme et amplifié afin d'être exploitable. L'annexe A est dédiée à la collection des signaux propres aux compteurs ³He.

- Les scintillateurs

Ce sont des détecteurs intrinsèquement très rapides dont le principe est de convertir des rayonnements ionisants en lumière visible (ou proche UV comme la longueur d'onde de 415 nm pour le NaI). La quantité de lumière de scintillation est, en première approximation, proportionnelle à la perte d'énergie dans le détecteur (loi de Birks). Plus le numéro atomique des constituants du scintillateur est élevé, plus la section efficace d'interaction avec les rayonnements γ est grande tout comme l'efficacité de détection. En plus comptage γ historiquement utilisé, les scintillateurs inorganiques offrent la possibilité de faire de la spectrométrie. Les scintillateurs organiques peuvent être utilisés pour du comptage neutron, leur résolution en énergie étant mauvaise pour les neutrons [40]. Dans le cadre de l'INA en puits de forage, des scintillateurs organiques (plastiques ou liquides), sensibles aux rayons γ mais aussi aux neutrons rapides via les noyaux de recul sur lesquels ils diffusent (ceux de carbone mais en majorité les protons), sont parfois utilisés pour monitorer le flux des générateurs de neutrons. En revanche, pour l'activation neutronique en puits de forage, on utilise des scintillateurs inorganiques comme le NaI qui permettent de mesurer l'énergie des particules γ issues des diffusions inélastiques des neutrons rapides (par exemple sur les noyaux de carbone et d'oxygène dans les sondes C/O) ainsi que des captures radiatives (raie à 2.2 MeV de l'hydrogène ou les nombreuses raies du chlore par exemple). Ces signatures énergétiques nous renseignent sur la composition chimique du milieu (sa lithologie).

Les NaI sont des scintillateurs peu chers et très souvent utilisés dans les sondes diagaphiques [26, 27, 28]. Ils présentent des temps de réponse courts, ce qui en fait de très bons détecteurs pour le comptage, même avec de forts flux γ incidents. La durée d'une impulsion d'un NaI est en effet inférieure à la microseconde, ce qui permet d'accéder à des taux de comptage de 10⁵ à 10⁶ s⁻¹ avec un taux d'empilement limité. Ils permettent, en outre, de faire de la spectroscopie de moyenne résolution (bien meilleure que celle des scintillateurs organiques mais bien moins bonne qu'avec les détecteurs au germanium hyper pur), cette dernière étant d'environ 7 % à 662 keV (largeur à mi-hauteur du pic photoélectrique d'une source de ¹³⁷Cs).

Le LaBr₃(Ce) est un autre scintillateur inorganique qui présente des performances encore plus grandes. Presque deux fois plus lumineux, il permet d'atteindre, en laboratoire et dans les meilleures conditions, 2.6 % à 662 keV [41] (plus proche de 3 % en pratique). La contrepartie réside toutefois dans son coût environ dix fois plus élevé que celui d'un NaI de volume identique. Le CeBr₃ constitue un compromis, avec une résolution légèrement moins bonne que le LaBr₃ (environ 4 % à 662 keV) et une constante de temps un peu plus longue (environ 25 ns contre 20 ns pour le LaBr₃(Ce)) mais il présente moins de bruit intrinsèque.

1.2.3 Bloc de détection de neutrons épithermiques

Dans le cadre de l'INA en puits de forage, il est inconcevable de faire de la spectrométrie neutron, par exemple dans le but de différencier les neutrons interrogateurs du générateur de ceux des fissions induites dans l'uranium, comme nous le verrons plus loin. En effet, mesurer correctement l'énergie des neutrons sur une plage allant de 14 MeV à 25 meV reste difficile même dans un laboratoire. Cependant, il est techniquement possible de compter les neutrons séparément par gamme d'énergie : rapides (typiquement > 1 MeV, limite arbitraire), épithermiques (> 1.5 eV) et thermiques. Dans le cadre de cette thèse, comme en neutronique, on appelle épithermiques les neutrons dont l'énergie est supérieure à 1.5 eV (un peu au dessus de l'énergie coupure du cadmium à 0.5 eV). Ces derniers sont d'une importance capitale en INA *in situ*, ils ne sont pas affectés par la température du milieu, et peu enclins à être absorbés par le chlore ou le bore contrairement aux neutrons thermiques (énergie voisine de 0.025 eV à température ambiante). La mesure PFN abordée en partie 1.2.4 est basée sur la mesure de neutrons épithermiques.

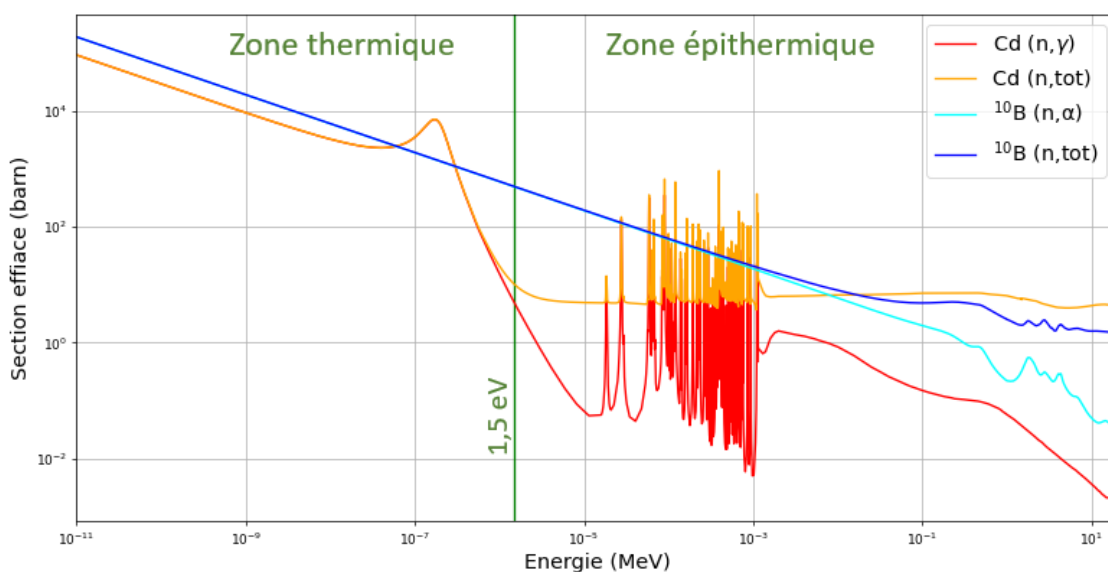


FIGURE 1.11 – Sections efficaces de capture neutronique du Cd et du ^{10}B [42]

Il n'existe pas de détecteur sensible uniquement aux neutrons épithermiques, par conséquent, il est nécessaire de filtrer les neutrons thermiques avec un blindage. Pour cela, deux matériaux sont préférentiellement utilisés : le cadmium et le bore, ce dernier est le plus souvent sous forme de carbure de bore B_4C . On peut voir sur la figure 1.11 les sections efficaces d'interaction, respectivement de capture radiative (n,γ) pour le Cd et (n,α) pour le ^{10}B . La droite verticale verte est placée à 1.5 eV et délimite l'entrée dans la région épithermique. On s'aperçoit que les sections efficaces des deux absorbants dans la zone thermique sont de l'ordre de plusieurs milliers de barns.

Le Cd peut être utilisé avec une grande pureté (plus de 99 %), il faut donc des épaisseurs environ cinq fois plus importantes de B_4C pour obtenir la même absorption avec des produits commerciaux comme le Flexibore[®], mélange de caoutchouc et de B_4C (50 %) se présentant sous la forme de feuilles souples faciles à découper et à agencer. Bien que ductile, le cadmium est plus difficile à découper et à usiner, notamment en raison de sa toxicité, or il présente l'avantage de prendre moins de place dans une sonde diagraphique où le volume disponible est très limité.

Remarque : Dans le cadre d'un bloc de mesure industriel, il serait possible d'utiliser du $^{10}\text{B}_4\text{C}$ (enrichi en ^{10}B à 90 %) moulé sur mesure pour augmenter son efficacité et diminuer l'épaisseur requise.

Pour un blindage efficace, il faut au moins 1.5 mm de Cd ou 10 mm de Flexibore® [43] (avec une proportion de ^{10}B de l'ordre de 20 % dans le bore naturel du B_4C), le blindage qui permet de minimiser le bruit de fond actif pour la mesure PFN étant alors un sandwich de 0.5 mm de Cd à l'intérieur et 5 mm de Flexibore® à l'extérieur [44]. Lorsque le bruit thermique du générateur est susceptible de noyer le signal épithermique (cas des neutrons de fission dans la mesure PFN), il est primordial de veiller à l'étanchéité du blindage en évitant toute vue directe de l'intérieur du bloc, au moyen de recouvrements des feuilles de Cd et/ou Flexibore®, et d'une chicane pour la sortie du câble du compteur. Certaines sondes utilisent des gaines externes de carbure de bore afin d'atténuer le flux de neutrons thermiques en provenance de certaines zones de l'environnement de mesure (ex : sonde RockView [45]). Ceci permet d'augmenter la sensibilité spatiale d'une zone d'intérêt, typiquement la formation géologique et non le puits.

Après avoir filtré les neutrons thermalisés avec le Cd et/ou le B_4C , il est nécessaire de détecter les neutrons épithermiques qui ont franchi cette barrière. Les compteurs à ^3He ont une très bonne efficacité pour les neutrons thermiques (5327 b à 25 meV) mais qui chute fortement quand on arrive dans la zone épithermique (seulement 740 b à 1.5 eV), comme le montre la figure 1.12. Afin d'augmenter l'efficacité de détection, on thermalise donc les neutrons épithermiques après leur passage au travers du blindage en Cd et/ou B_4C . Des composés hydrogénés comme le polyéthylène ($[\text{CH}_2]_N$) sont utilisés comme modérateurs mais également comme réflecteurs autour du compteur à ^3He , augmentant significativement le comptage. Par simulation nous avons évalué à au moins 1 cm de polyéthylène devant (rôle modérateur) et plusieurs centimètres derrière le compteur (réflecteur) l'épaisseur permettant d'avoir un effet significatif. Dans le cas des sondes mesurant la porosité hydrogène épithermique, lorsque le volume disponible n'est pas suffisant, les constructeurs de sondes privilégient le volume de détection au lieu de recourir à la thermalisation [21, 46].

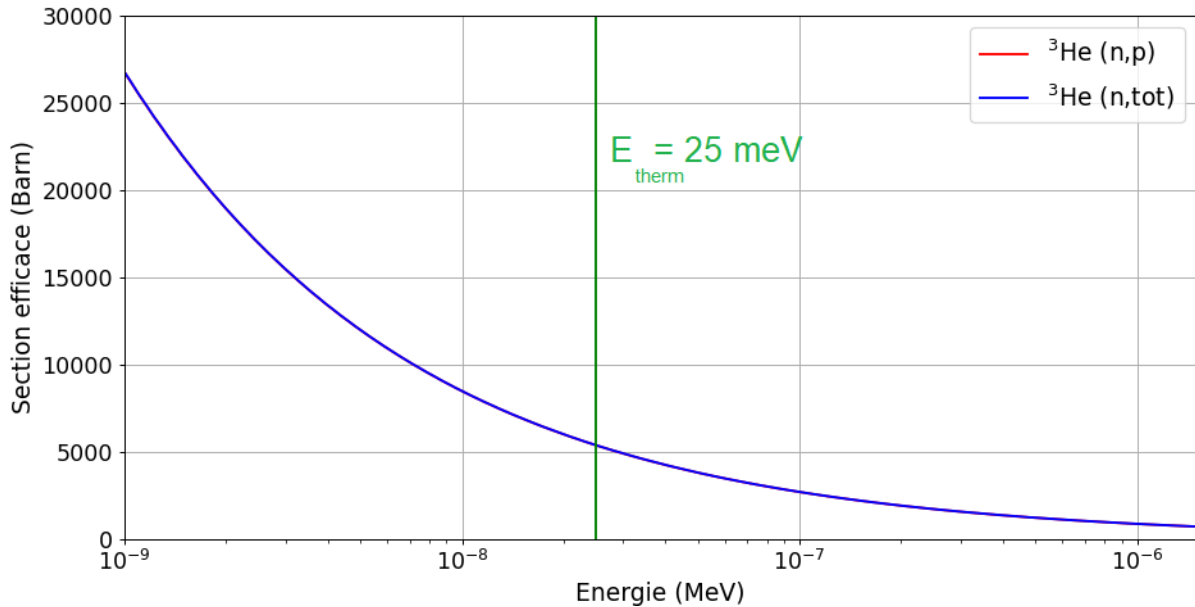
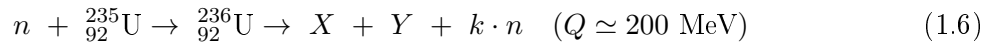


FIGURE 1.12 – Sections efficaces de capture neutronique de l' ^3He [42]

1.2.4 Mesure de la teneur en uranium par détection des neutrons prompts de fission

L'objectif premier du développement d'une sonde neutronique pour la prospection minière de l'uranium est la mesure de la teneur en uranium. Cette mesure repose sur la détection des neutrons prompts de fission induite sur les noyaux d' ^{235}U . Le rapport des concentrations $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ est supposé constant dans l'environnement (0.72 %). C'est entre les tirs du générateur que la mesure est effectuée, lorsque les neutrons incidents sont thermalisés. Bien que l' ^{235}U soit moins de 100 fois moins abondant que l' ^{238}U , sa section efficace de fission induite par un neutron thermique (de 25 meV) est 3.4×10^7 fois supérieure (respectivement 590 et 1.7×10^{-5} b [42]). Cette réaction est décrite par l'équation 1.6 ci-dessous :



Avec X et Y les produits de fission, et k le nombre de neutrons prompts produits ($\langle k \rangle = 2.47$). Chaque neutron emporte alors une énergie de 2 MeV en moyenne. Des neutrons rapides secondaires sont donc produits dans la formation d'intérêt : ce sont les neutrons prompts de fission. Ils vont à leur tour diffuser dans leur environnement et se thermaliser. La quantité de neutrons produits par fission induite est alors proportionnelle au nombre de noyaux d' ^{235}U présents dans le volume interrogé et au nombre de neutrons thermiques incidents en première approximation.

Remarque : des neutrons dits retardés (DFN en anglais pour *Delayed Fission Neutrons*) sont également produits en moindre proportion (moins de 1 % par fission) et sur une durée allant de quelques millisecondes à quelques minutes selon les précurseurs de neutrons retardés (voir annexe B).

Deux neutrons rapides étant indiscernables, on utilise une discrimination temporelle pour différencier les neutrons primaires issus du générateur des PFN. Une impulsion de neutrons interrogateurs d'une durée allant de quelques μs à 1 ms est générée par l'accélérateur D-T, typiquement 50 μs dans le cadre de l'INA en puits de forage. Les durées étant contraintes par les constantes de temps des signaux d'intérêt et le taux de travail imposé par le générateur (entre 1 et 10 %). Les neutrons de 14 MeV émis par ce dernier se thermalisent complètement sur une durée fonction de la quantité d'hydrogène dans le volume interrogé, environ 800 μs dans la plupart des formations. Les neutrons de fission sont produits tant qu'il y a des neutrons thermiques dans l'environnement, généralement pendant plusieurs millisecondes, et peuvent être mesurés sur cette même durée, comme le montre la figure 1.13.

Ce chronogramme représente l'évolution du comptage neutronique après une impulsion de neutrons de 14 MeV produits par un générateur D-T. Les différentes courbes (à l'exception des ronds blancs) représentent les signaux mesurés par un compteur à ^3He blindé par du cadmium, et donc sensible aux neutrons épithermiques. Étant donné le faible nombre de neutrons produits dans l'uranium au regard du nombre de neutrons interrogateurs, il est indispensable de mesurer ces neutrons quand ils sont encore épithermiques pour les discriminer des neutrons thermiques interrogateurs. Les différentes courbes correspondent à des teneurs en uranium différentes. La courbe correspondant au signal des neutrons thermiques interrogateurs au cours du temps est mesurée avec un moniteur non blindé tel que celui de la figure 1.16. Le temps de montée du signal est de quelques μs , puis le taux de comptage commence à décroître exponentiellement après un court plateau correspondant à la durée d'émission de l'impulsion neutronique du générateur (ici environ 20 μs [47]).

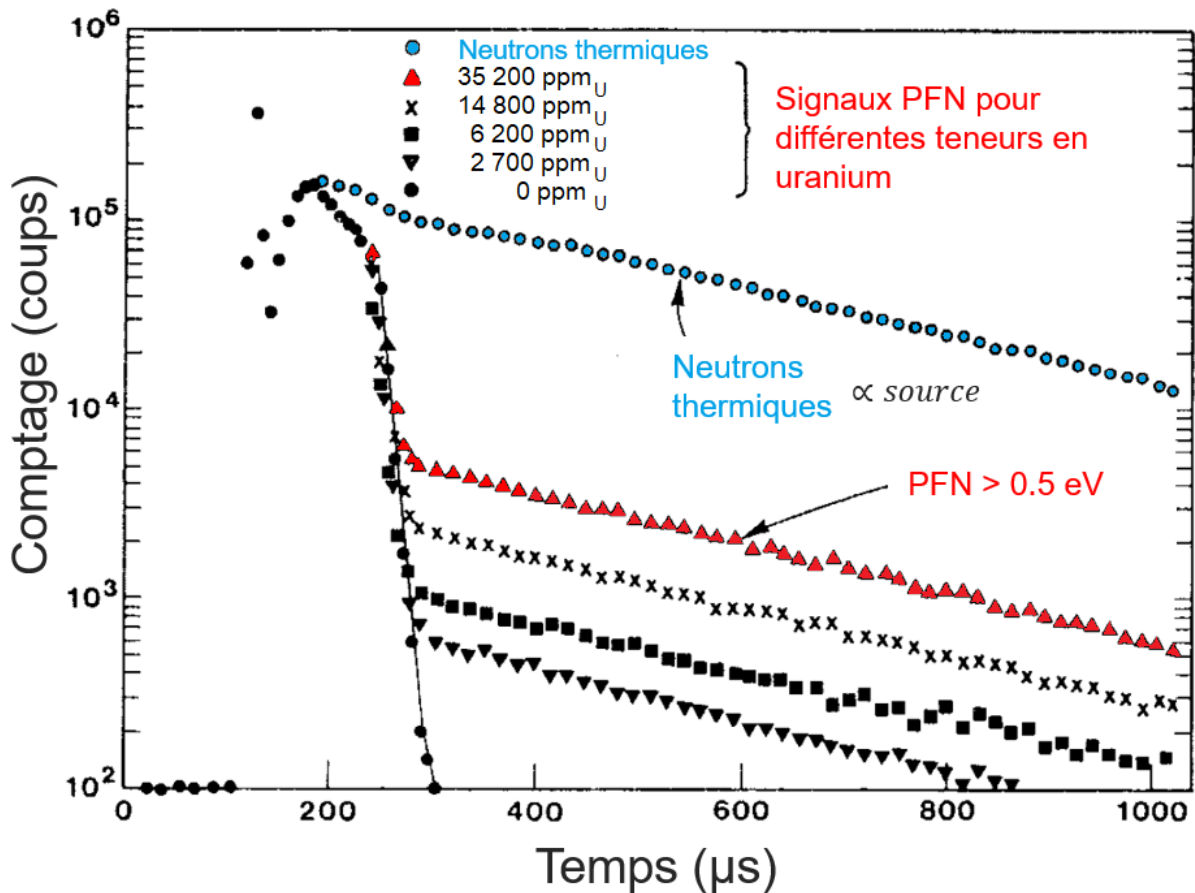


FIGURE 1.13 – Principe de fonctionnement de la mesure de teneur en uranium par détection de PFN [48]

Les courbes de la figure 1.13 montrent un écart de plus d'une décade entre le comptage des neutrons thermiques, qui servent à monitorer le générateur, et le signal épithermique correspondant à la teneur en uranium la plus importante (d'environ 3 %). La pente commune à toutes les courbes à partir de $300 \mu\text{s}$ est fonction de la concentration des différents thermalisants et absorbants neutroniques dans le volume interrogé, comme les noyaux d'hydrogène qui ont ces deux propriétés : plus ces derniers sont présents en concentration élevée, plus le signal diminue vite (voir figure 1.14). Sur la figure 1.13, l'amplitude des signaux est bien proportionnelle à la teneur en uranium, en première approximation.

Remarque : ^{235}U étant lui-même un fort absorbant neutronique, des effets d'auto-protection (absorption du flux neutronique interrogateur) peuvent être observés pour de fortes teneurs ou pour des pépites d'uranium.

Il est intéressant de normaliser l'émission neutronique en mesurant le flux de neutrons thermiques car l'émission de neutrons du générateur peut fluctuer (de plusieurs %) au cours d'une même journée de mesure, et diminue à plus long terme tout au long de la vie de l'appareil (décroissance du tritium, vieillissement de la cible par pulvérisation ionique). De plus, le moniteur de flux thermique est soumis à la concentration d'hydrogène et autres absorbants neutroniques. En effectuant un ratio entre le signal thermique et le signal épithermique, il est donc possible de compenser en partie les effets d'absorption neutronique de la formation. Par exemple, la figure 1.14 montre qu'il est faisable, à l'aide de la constante de décroissance du signal thermique, de corriger en grande partie l'effet de l'hydrogène de la formation sur le signal des neutrons prompts de fission épithermiques, ces deux informations étant en partie corrélées.

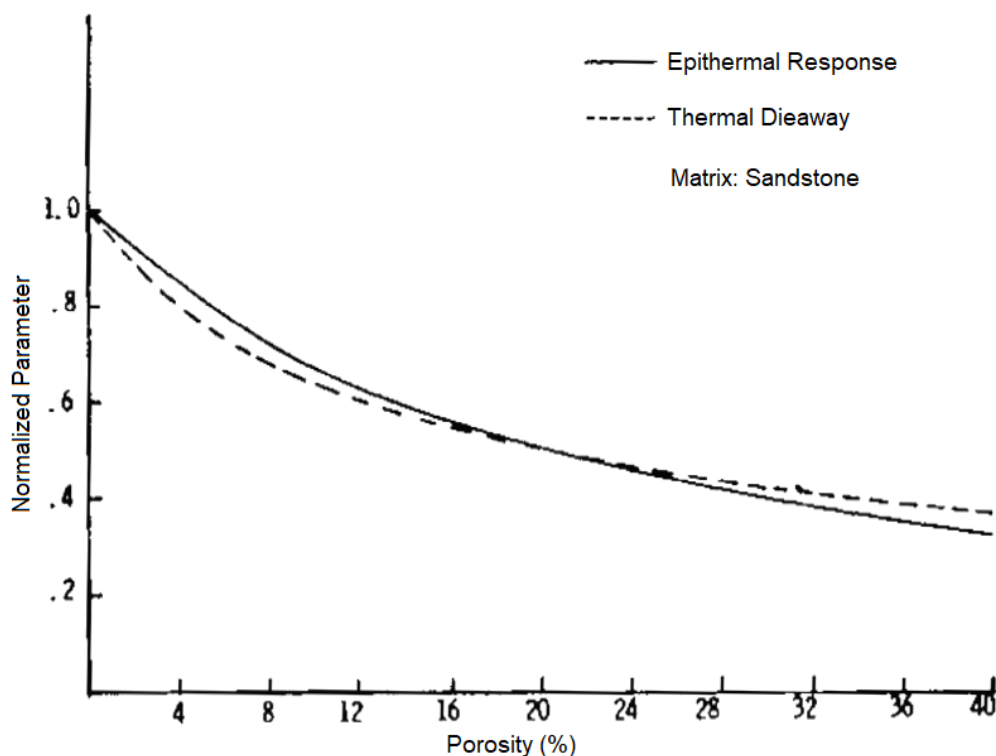


FIGURE 1.14 – Effet de la porosité sur les signaux thermiquesⁱ et épithermiquesⁱⁱ [49]
ⁱpente de la courbe du moniteur de neutrons thermiques de la figure 1.13, courbe en pointillés
ⁱⁱsignal des neutrons prompts de fissions induites

Ce ratio des signaux permet donc, en première approximation, de compenser les effets de l'hydrogène, avec des ajustements à faible ou forte porosité où les courbes évoluent légèrement différemment. Dans l'idéal, il faudrait une mesure précise de la porosité ou une calibration de la sonde en fonction de la porosité pour pouvoir effectuer la mesure de teneur en uranium dans de bonnes conditions. En pratique, les utilisateurs de sondes calibrent peu leurs outils, en raison du temps et des contraintes techniques requis. Les mesures normalisées sont donc une pratique courante afin d'avoir un résultat de mesure exploitable.

1.2.5 Mesure PFN *in situ*

L'usage de la mesure PFN dans le cadre de la prospection minière de l'uranium est décrit dans un brevet de 1979 [47]. Les éléments expliqués dans la partie 1.2.4 sont remis en contexte dans un puits de forage avec les contraintes réelles associées. Dans un cas idéal, la sonde diagraphique réalisant la mesure de teneur par détection des PFN doit avoir le même diamètre que le puits de forage à caractériser comme présenté dans la figure 1.15. On peut voir dans la sonde un générateur D-D ou D-T émettant des impulsions de neutrons rapides. Ces derniers se propagent dans la formation rocheuse et se thermalisent. Si des noyaux d' ^{235}U se trouvent dans la formation, il y a alors fission induite de ces derniers. Les neutrons de fission sont émis avec une énergie moyenne de 2 MeV et il est possible alors d'en détecter une fraction avec les compteurs ^3He après thermalisation (partielle ou totale respectivement pour le signal épithermique et le signal thermique). Le ratio entre les neutrons thermiques et épithermiques permet non seulement de corriger les fluctuations d'émission que peut rencontrer le générateur, les effets d'absorption des neutrons thermiques, mais également ceux liés à la densité de la formation affectant les deux signaux de façon similaire.

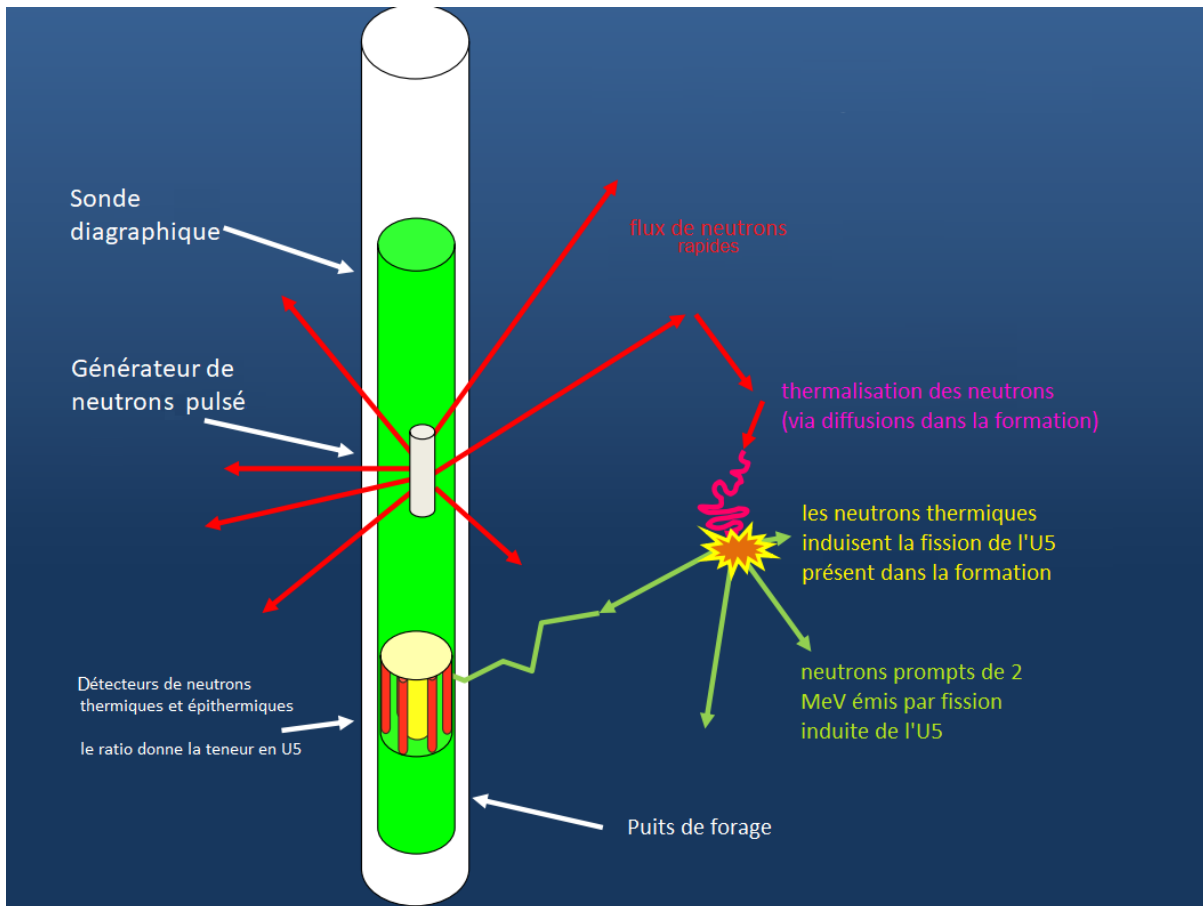


FIGURE 1.15 – Principe de fonctionnement d’une sonde diagraphique PFN [50]

Sur la figure 1.16, il est possible de voir les différents éléments constitutifs du bloc de détection de la sonde développée par *Mobil Research & Development Corporation* à la fin des années 1980. Pour détecter le signal de neutrons épithermiques, l’outil utilise un compteur ^3He de 15 cm de longueur active à une pression de 15 bar et de 2.54 cm de diamètre (1"). Ce compteur est entouré de polyéthylène, lui-même contenu dans un blindage en cadmium. Ce dernier est plié vers l’intérieur pour épouser la forme de 6 compteurs BF_3 sensibles aux neutrons thermiques. Ces derniers font également 15 cm de long pour un diamètre de 0.8 cm et une pression de 0.5 bar. Ce design garantit à l’ensemble des détecteurs d’être à la même distance de la source, ici 15 cm.

Remarque : La sonde dispose également d’un scintillateur éloigné du générateur d’une distance de 2.6 m sensible aux rayonnements γ . Ce dernier est utilisé pour faire une mesure de la radioactivité naturelle par comptage total passif.

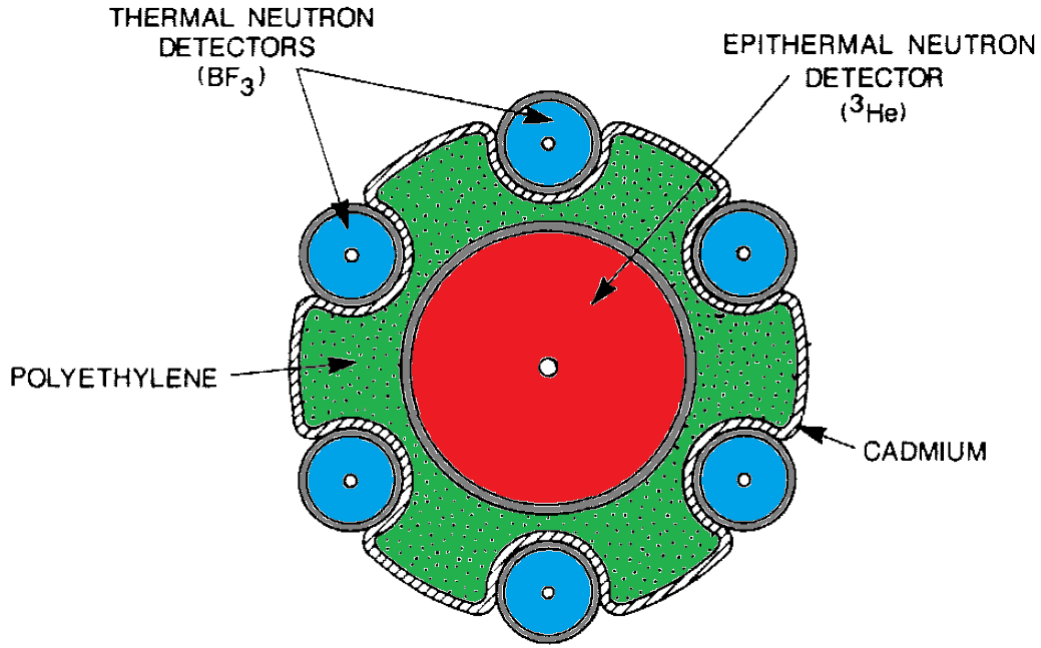


FIGURE 1.16 – Plan en coupe du bloc de détection du *PFN logging tool* (Mobil R & D Corporation) [51]

La résolution spatiale de la mesure ainsi que la profondeur d'interrogation sont directement liées à la distance source-détecteurs. Cette profondeur d'interrogation est définie comme le rayon du volume de la formation d'où provient 90 % du signal. Elle est fonction des outils diagraphiques, mais varie en général entre 20 et 40 cm. Pour une formation rocheuse (silice) avec une porosité faible ou nulle, les outils diagraphiques de la littérature affichent une profondeur d'interrogation de 40 cm [49].

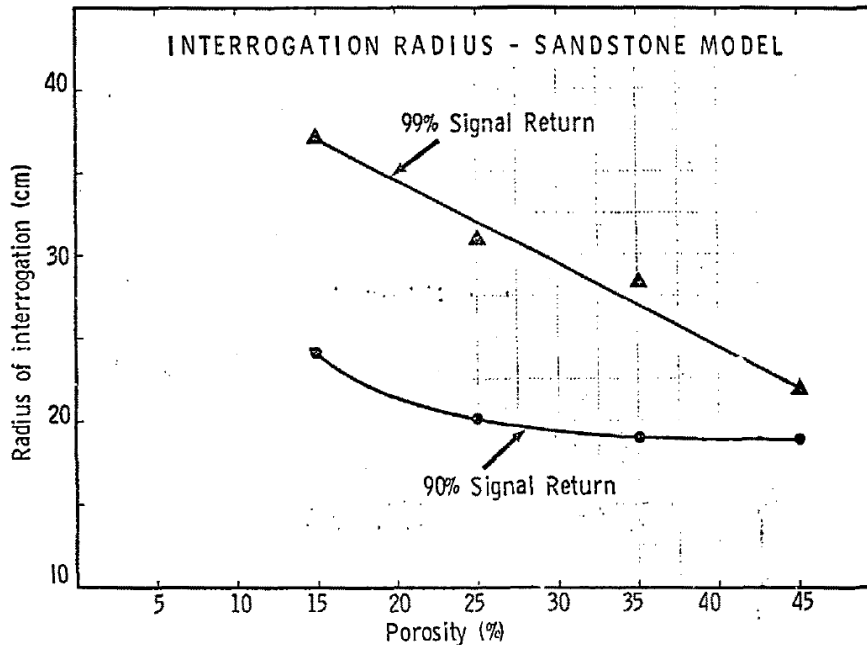


FIGURE 1.17 – Rayon d'interrogation d'une mesure de PFN en fonction de la porosité hydrogène, dans un puits de 121 mm de diamètre et avec une formation de silice complètement saturée en eau [48]

En ce qui concerne la profondeur d'interrogation, la teneur en hydrogène de la formation géologique (ou porosité H, voir partie 1.2.6) influence fortement la distance de propagation des neutrons. Ainsi, avec une formation sans hydrogène, il est possible de sonder plusieurs dizaines de centimètres de matière, contre seulement quelques centimètres dans un cas fortement hydrogéné. Ce paramètre affecte également les limites de détection de la technique. Pour un temps de mesure de quelques minutes, la mesure de PFN est sensible à des teneurs très faibles allant de quelques ppm_U à quelques dizaines de ppm_U, respectivement sans et avec beaucoup d'hydrogène dans la formation. Ces domaines de concentration en uranium ne sont pas accessibles en des temps comparables par les autres techniques de mesure de teneur en uranium, comme la spectrométrie γ . La PFN permet, en outre, d'accéder directement à la quantité d'²³⁵U de la formation et de s'affranchir des déséquilibres radiologiques dans la chaîne de l'uranium (entraînant différentiel de l'uranium et du radium, les descendants de ce dernier générant l'essentiel du signal γ) pouvant perturber la mesure par spectrométrie γ [3].

Remarque : comme nous le verrons dans le chapitre suivant, la sensibilité de la mesure PFN (signal par unité de teneur en uranium) dépend fortement de la porosité H de la formation, il est donc impératif de connaître cette dernière pour pouvoir extrapoler une teneur à partir du taux de comptage mesuré.

1.2.6 Mesure de la porosité hydrogène

La porosité hydrogène est une grandeur physique d'intérêt comme nous l'avons vu dans les parties 1.1.5 et 1.2.5. En effet, ce paramètre influe sur la mesure de teneur en uranium par détection de PFN sur plusieurs aspects : amplitude du signal, profondeur d'interrogation, temps de mesure et sensibilité. De plus, la porosité est une grandeur d'importance au niveau opérationnel dans la prospection minière, mais aussi dans l'industrie des hydrocarbures. Sa valeur permet de remonter à d'autres grandeurs comme la perméabilité du milieu, qui définit le mode opératoire appliqué au forage. Dans le cadre de la mine, il est alors possible d'estimer en amont plus précisément le rendement du futur puits : plus la roche est poreuse, plus la lixiviation est aisée. En revanche, une trop grande porosité peut induire une fragilisation de la formation et imposer un protocole d'extraction plus prudent, avec par exemple un tubage rapide du puits. Enfin, la mesure de porosité hydrogène est souvent conjointe à une mesure de densité ou de résistivité électrique, ces grandeurs permettent ainsi aux géologues d'avoir une idée précise de la lithologie.

La mesure de la porosité hydrogène est basée sur la diffusion neutronique : les noyaux d'hydrogène ont quasiment la même masse que les neutrons interrogateurs. Ils perdent alors rapidement leur énergie par diffusions successives et deviennent de plus en plus sensibles aux noyaux fortement absorbants comme le chlore ou le bore. Plus il y a d'hydrogène dans un volume interrogé, plus le flux neutronique rétrodiffusé est modéré et atténué. La figure 1.18 montre cette tendance : plus la porosité augmente, plus le comptage des neutrons rétrodiffusés diminue. A gauche, on voit un comptage de neutrons épithermiques pour différentes lithologies. A droite, on voit que la tendance est la même pour deux compteurs de neutrons thermiques. Ces derniers sont toutefois plus sensibles aux absorbants du milieu, à la température ainsi qu'aux effets lithologiques. Les neutrons épithermiques restent, quant à eux, sensibles au nombre de noyaux d'hydrogène présents dans le volume interrogateur. Les neutrons épithermiques étant beaucoup moins nombreux, d'un ordre de grandeur, l'incertitude statistique associée à ce type de mesure a poussé les fabricants de sondes à développer des outils basés sur la détection des neutrons thermiques.

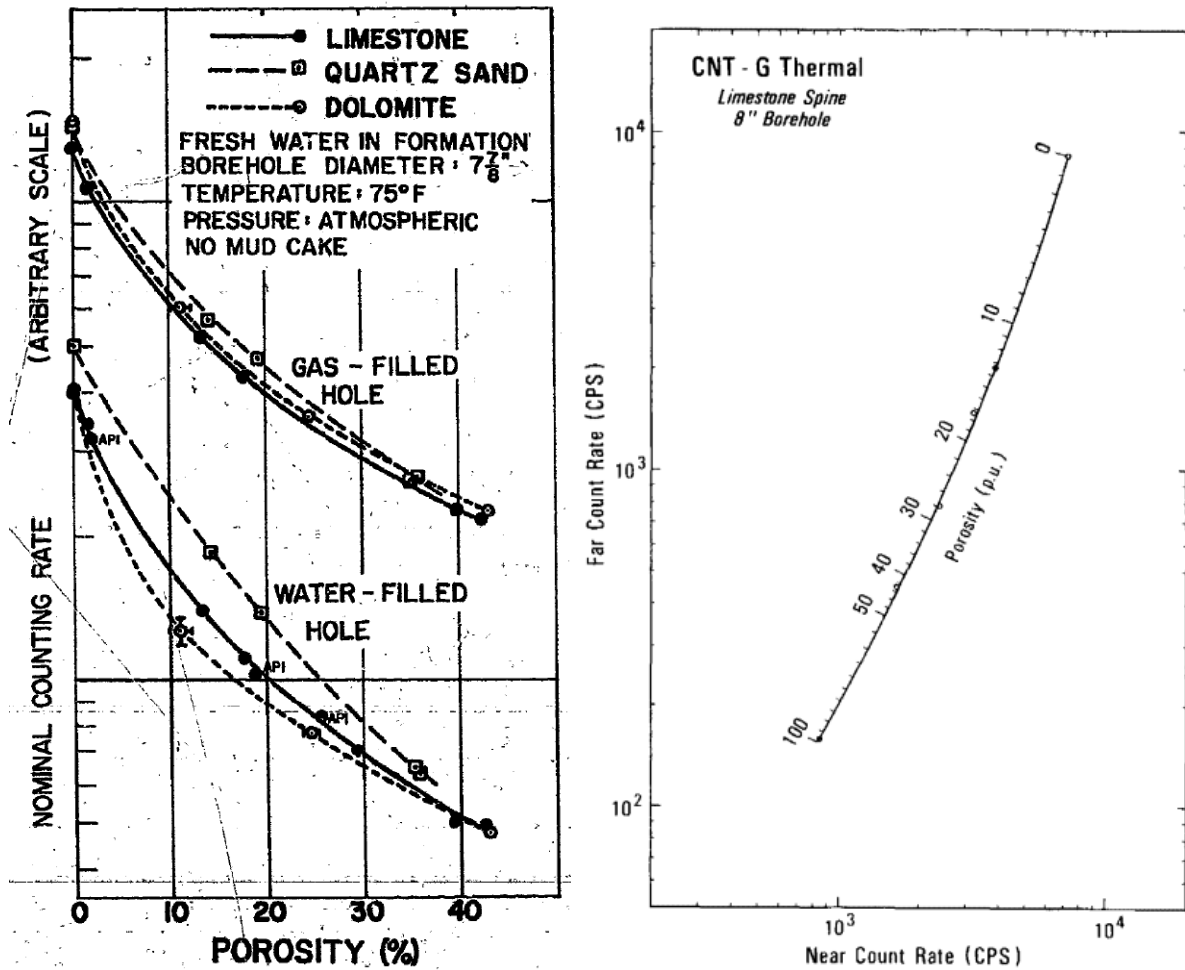


FIGURE 1.18 – Mesure de porosité hydrogène via la détection de neutrons épithermiques (à gauche) [21] et avec deux détecteurs de neutrons thermiques (à droite) [52]

La mesure de porosité hydrogène repose traditionnellement sur au moins deux compteurs sensibles aux neutrons thermiques, on parle alors de compensated neutron tools (CNL). Ils sont disposés du même côté d'une source de neutrons rapides (historiquement de type AmBe ou PuBe [52]) et espacés respectivement d'environ 30 et 60 cm de cette dernière. Ces détecteurs sont désignés respectivement comme proche (*near*) et lointain (*far*). Ici encore, la résolution spatiale de l'outil dépend de la distance source-détecteurs, la zone interrogée étant comprise entre ces éléments. Le détecteur *far*, du fait de l'angle solide et du volume de matière interrogée plus important, compte moins de neutrons que le détecteur *near*. Les neutrons, que ce détecteur va recenser, sondent la formation plus en profondeur, l'espacement du deuxième compteur est donc un compromis entre statistique de mesure et profondeur d'interrogation souhaitée.

Contrairement au cas idéal mentionné en 1.2.5, les sondes diagaphiques évoluent le plus souvent dans un forage qui n'épouse pas parfaitement leur forme : le diamètre du puits est obligatoirement plus grand que celui de l'outil diagaphique qui y est inséré. Moins l'outil épouse le puits, plus sa sensibilité diminue. De plus, le diamètre varie d'un puits à l'autre et peut même changer au sein d'un même forage. C'est une contrainte qui fait varier le volume d'eau, et donc la quantité d'hydrogène, constituant l'environnement direct de la sonde. La présence d'un tubage peut également venir perturber la mesure. Afin de diminuer au mieux les effets de diamètre de forage, les sondes diagaphiques sont plaquées contre une surface à l'aide d'un bras excentreur (*caliper* ou diamètreur pour les outils de type densité γ et *bow spring* ou excentreur pour les outils de type porosité neutron) comme celui visible sur la figure 1.19.

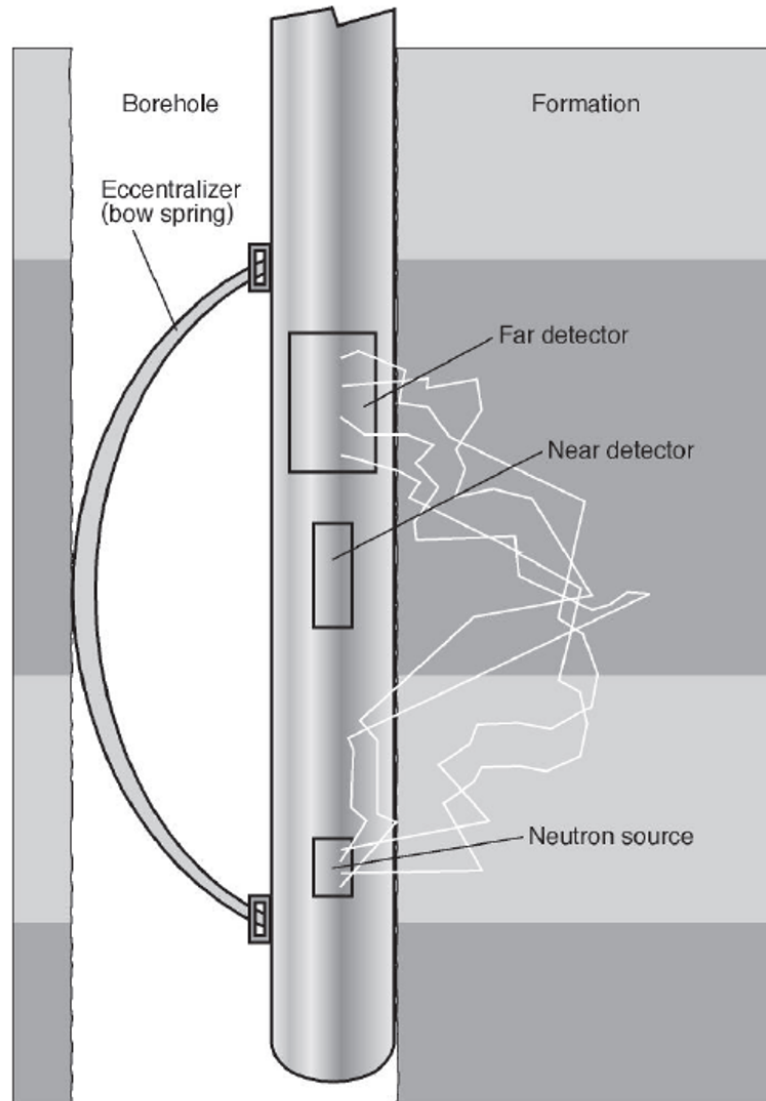


FIGURE 1.19 – Principe de fonctionnement de la mesure de porosité hydrogène par une sonde diagraphique [53]

Sur la figure 1.19, on peut voir le schéma de fonctionnement d'une sonde neutronique CNL mesurant la porosité d'une formation. Les neutrons issus de la source diffusent et se thermalisent dans le milieu jusqu'à être détectés par les compteurs. Pour un volume de formation interrogée considéré comme constant, une plus grande porosité implique un nombre de noyaux d'hydrogène plus important sur le parcours des neutrons mesurés par le détecteur *far*. Il en résulte une diminution du comptage de ce détecteur, plus rapide que celle du *near* avec la porosité. Lorsqu'on effectue un ratio *near/far*, ce dernier va donc augmenter linéairement avec la teneur en hydrogène dans la formation puis commencer à saturer lorsque la porosité devient très importante, comme on peut le voir sur la figure 1.20 (on voit l'effet de saturation commencer autour de 35 %). En effectuant un tel ratio, il est possible de s'affranchir de certains effets affectant les comptages des deux détecteurs comme la densité du milieu, la salinité, la température ou encore la concentration de certains absorbants neutroniques. Il n'est toutefois pas possible de compenser complètement ces effets dans le cas de matrices très hétérogènes, les compteurs proche et lointain n'étant pas sensibles au même volume interrogé.

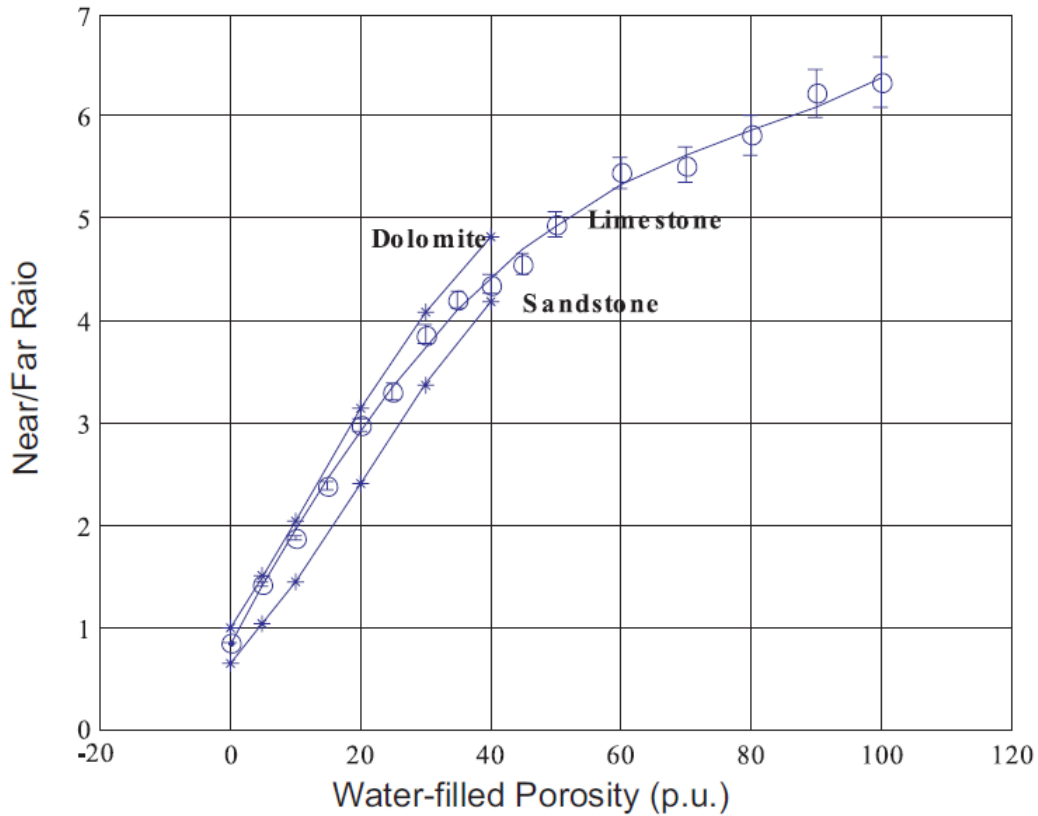


FIGURE 1.20 – Ratio des taux de comptage des détecteurs *near* et *far* lors d’une mesure de porosité hydrogène thermique entre différentes formations pour une sonde générique [53]

1.3 Conclusion et apport de la thèse

La production d’uranium repose de plus en plus sur les gisements de type *roll-front* exploités par lixiviation in-situ. Ce type de gisement présente des teneurs en uranium relativement faibles ($< 200 \text{ ppm}_U$) et sur des volumes restreints, il est donc impératif lors de la phase d’exploration de localiser et quantifier précisément le gisement. La mesure de porosité hydrogène, correspondant au volume d’eau présent dans la formation géologique, peut permettre de remonter à la perméabilité des différentes strates du puits de forage pour mieux exploiter et modéliser les structures géologiques.

L’interrogation neutronique active en puits de forage repose de plus en plus sur l’utilisation de générateurs de neutrons pulsés. Ces derniers peuvent servir pour différentes mesures comme celle de la teneur en uranium par détection de PFN ou la porosité hydrogène. Ces sources pulsées permettent d’atteindre des émissions intenses et donc des temps de mesure plus courts que les sources isotopiques historiques (comme l’AmBe) avec une statistique de mesure suffisante. En blindant avec du cadmium ou du carbure de bore les différents détecteurs sensibles aux neutrons, il est possible de compter ces derniers en les discriminant par énergie. Un compromis doit toutefois être effectué pour les épaisseurs de blindages et de modérateur, afin d’optimiser les comptages dans un volume de mesure limité.

La mesure de teneur en uranium via la détection de neutrons prompts de fission est une technique permettant de déterminer la concentration de noyaux d' ^{235}U dans un volume d'intérêt. Il est possible en quelques minutes, avec une émission neutronique de l'ordre de 10^8 s^{-1} , de détecter de faibles teneurs en uranium ($< 200 \text{ ppm}_\text{U}$). Cette technique n'est pas sensible aux déséquilibres chimiques ayant pu avoir lieu entre les descendants de la chaîne de l' ^{235}U comme peuvent l'être les mesures basées sur la spectrométrie γ . En revanche, elle est fortement dépendante de la concentration d'hydrogène dans la formation et nécessite une correction préalable.

La mesure de porosité hydrogène permet d'effectuer cette correction et s'avère être nécessaire au bon fonctionnement de la mesure PFN, en plus de la connaissance qu'elle apporte sur la perméabilité de la formation, ce qui permet d'optimiser l'exploitation par lixiviation. Cette technique repose sur la rétrodiffusion des neutrons sur les noyaux d'hydrogène. Traditionnellement, c'est à l'aide d'au moins deux détecteurs sensibles aux neutrons thermiques que l'on effectue la mesure, l'un proche et l'autre plus éloigné de la source. Un ratio entre les comptages des deux détecteurs est effectué afin de compenser partiellement certains des effets qui peuvent perturber la mesure, comme la lithologie et l'environnement du puits. Mais les paramètres d'influence sont nombreux et, en pratique, il n'est pas possible de tous les corriger. Il faut donc idéalement réaliser des mesures complémentaires (densité, résistivité, sigma, RMN) afin de mieux caractériser l'environnement du puits et de déterminer la lithologie de la formation rocheuse.

Les outils diagraphiques permettant de mesurer la porosité hydrogène sont en général conçus dans ce seul but. De même, les sondes existantes capables de faire la détection de neutrons prompts de fission ne sont pas destinées à faire une mesure précise de la teneur en hydrogène de la formation géologique. Seule la dernière génération de sondes diagraphiques basées sur la PFN, et quelques outils en cours de développement, permettent également une mesure de porosité hydrogène. La plupart des outils compensent les effets environnementaux pouvant perturber leurs mesures à l'aide de ratios effectués entre plusieurs détecteurs identiques.

Aujourd'hui les outils les plus performants sont donc ceux contenant le plus grand nombre de détecteurs et effectuant le plus de mesures en simultané. Cette approche augmente de fait les coûts de production et d'exploitation de ces sondes diagraphiques. Il pourrait donc être intéressant de maximiser l'exploitation des données fournies par chaque détecteur, afin d'en diversifier les usages et d'en réduire le nombre. L'objectif principal de la thèse est de développer une nouvelle configuration d'outil diagraphique et les méthodes associées afin de réaliser les mesures de teneur en uranium et de porosité avec un seul détecteur de neutrons. La première étape du travail de recherche a été de reproduire les résultats de la littérature. Nous avons repris les travaux de l'université d'Austin (Texas) [54, 55], dont l'équipe d'Alberto Mendoza est spécialisée en outils diagraphiques pour l'industrie pétrolière.

Dans le chapitre suivant nous présenterons la géométrie de simulation permettant une mesure conjointe de la teneur en uranium et de la porosité hydrogène épithermique avec un seul détecteur. Cette méthode inventive et son dispositif associé ayant fait l'objet d'un dépôt de brevet [4], nous avons éprouvé la robustesse de la méthode à l'aide d'une étude paramétrique complète (diamètre du puits, écartement de la sonde par rapport à la paroi, lithologie, etc.), permettant d'identifier le cadre d'utilisation de cette méthode ainsi que les différentes corrections à apporter. Cette preuve de concept par simulation est ensuite appuyée par des mesures expérimentales présentées dans un dernier chapitre.

Chapitre 2 :

*Méthode de mesure conjointe de la
teneur en uranium et de la porosité hydrogène*

2.1 Introduction

Les méthodes d'interrogation neutronique active (INA), embarquées dans des sondes diagraphiques, permettent aujourd'hui de réaliser séparément les mesures de teneur en uranium et de porosité hydrogène en puits de forage :

- À l'aide de deux compteurs ^3He *near* et *far*, sensibles aux neutrons thermiques, et d'une source radioactive ou d'un générateur, il est possible de faire un ratio *near/far* des taux de comptages mesurés. Ce ratio est alors, en première approximation, proportionnel au volume de pores occupés par de l'eau. Les effets de puits et de matrice (modération et absorption neutronique) sont en partie compensés car ils affectent de façon similaire les deux détecteurs.

- À l'aide d'un détecteur épithermique, par exemple un compteur ^3He blindé avec du cadmium, un moniteur thermique (c'est à dire un autre compteur sans cadmium) et une source de neutrons pulsés, il est possible entre les impulsions du générateur de faire la mesure des neutrons prompts de fission (PFN) induits sur les noyaux d' ^{235}U de la formation. Cette mesure se fait là aussi par l'intermédiaire d'un ratio entre les comptages mesurés par les différents détecteurs. Là encore, une partie des effets pouvant perturber la mesure est compensée.

Remarque : le ou les moniteurs thermiques utilisés pour la mesure PFN peuvent être directement sensibles aux neutrons [51] ou mesurer les rayonnements γ liés aux captures radiatives des neutrons thermiques par les noyaux de certains éléments de la sonde [49].

La superposition (ou *stacking*) de sondes diagraphiques servant à mesurer des grandeurs différentes est un usage courant. Ainsi, pour mesurer la porosité hydrogène, la teneur en uranium et la densité de formation avec un seul dispositif, il est possible d'assembler trois modules chacun dédié à une mesure. Seules certaines sondes ou projets de sondes [56] de dernière génération proposent d'intégrer plusieurs mesures au sein d'un seul module.

L'objectif du chapitre est de présenter l'étude par simulation numérique d'une méthode innovante qui a fait l'objet du dépôt de brevet FR2110722 [4] lors de la thèse. Cette méthode propose de réaliser les deux mesures mentionnées ci-dessus (porosité hydrogène et teneur en uranium) dans un seul module de sonde diagraphique, mutualisant ainsi l'usage du générateur de neutrons. Contrairement aux outils en développement [56] qui utilisent les méthodes historiques exposées précédemment, la méthode présentée ici repose sur l'utilisation d'un unique détecteur sensible aux neutrons épithermiques. De plus, au lieu de réaliser un comptage total pour la porosité hydrogène, ou sur une fenêtre de temps dédiée pour la mesure PFN, notre technique exploite au moins deux fenêtres de temps distinctes après chaque impulsion neutronique du générateur. A plus long terme, c'est l'exploitation de l'ensemble de l'information contenue dans les chronogrammes neutroniques mesurés qui est visée.

Dans un premier temps, nous présenterons la géométrie de mesure simulée à l'aide du code de transport MCNP6.1 [5] qui a permis d'établir la faisabilité de la méthode. Nous expliquerons ensuite l'analyse des chronogrammes neutroniques obtenus par simulation, qui permet d'obtenir une mesure de la porosité hydrogène et de la teneur en uranium. Pour finir, ce chapitre montrera une étude paramétrique mettant en évidence l'effet des principaux paramètres d'influence du puits (diamètre, tubage, position de la sonde...) et de la formation géologique (composition, densité, ...) sur les signaux mesurés. Cette dernière partie permet de cibler un domaine de validation et d'utilisation de la méthode.

2.2 Présentation de la géométrie de simulation

2.2.1 Paramètres liés à la simulation numérique

L'intégralité des résultats de simulation présents dans ce document a été obtenue à l'aide du code transport de particules MCNP.6.1 [5]. Toutes les bibliothèques de sections efficaces utilisées sont issues de ENDF/B-VIII [42] dans la mesure de leur disponibilité, certains matériaux n'ayant pas refait l'objet d'évaluations pour cette bibliothèque (identifiée dans MCNP avec l'extension « .80c » pour chaque isotope disponible). Dans le même esprit, les bibliothèques incluant les effets moléculaires qui ont un effet au niveau du transport des neutrons thermiques (bibliothèques « $S(\alpha,\beta)$ ») sont appelées dans la mesure de leur disponibilité pour les différents matériaux présents dans les simulations [57].

Lors des différentes simulations, lorsque la porosité hydrogène est étudiée plus spécifiquement, le temps de calcul est plus court grâce à la bonne statistique du signal. Avec une centaine d'heures CPU par simulation, nous obtenons des incertitudes associées au calcul inférieures à 1 %. Cela explique l'absence apparente de barres d'incertitudes dans certaines figures, elles sont de fait incluses dans l'épaisseur des points.

En ce qui concerne les études ciblées sur la teneur en uranium, le signal associé est inférieur de deux ordres de grandeur, dans les cas favorables, à celui de la porosité hydrogène. Pour pallier la mauvaise précision statistique des calculs Monte Carlo qui en résulte, nous avons, d'une part, alloué plus de temps par calcul (au moins 1000 h CPU par simulation), et d'autre part, nous avons fait appel à une technique de réduction de variance implémentée dans MCNP : les fenêtres d'importances ou *weight windows* (voir partie 2.2.3). Ceci nous a permis d'obtenir des incertitudes relatives associées à la simulation comprises entre 1 et 15 %. Pour des teneurs inférieures à 250 ppm_U, le temps de calcul par simulation nécessaire à l'obtention d'incertitudes statistiques satisfaisantes (< 5 %) est de l'ordre de plusieurs kh CPU.

Dans ce second chapitre nous présentons la géométrie générale de la sonde diagraphique à partir de laquelle les études de faisabilité du brevet ont été réalisées. La géométrie de la sonde de laboratoire utilisée pour la validation expérimentale diffère légèrement et sera présentée en chapitre 3. Cependant, toutes les caractéristiques générales (source, détecteur, diamètre de l'outil) sont communes aux deux outils simulés.

2.2.2 Géométrie de la sonde

- Modélisation du générateur

L'élément le plus limitant étant la géométrie du générateur de neutrons pulsés, le dimensionnement de l'outil repose sur les caractéristiques du GENIE16 [58] utilisé au LMN, qui n'est pas un appareil miniaturisé dédié aux sondes de forage. Nous modélisons ce générateur car nous disposons de la géométrie interne détaillée, et ses dimensions se rapprochent de ceux employés dans les sondes génériques de l'Université d'Austin (Texas).

Remarque : D'après SODERN [59], son constructeur, le terme « générateur de neutrons » comprend l'ensemble des éléments suivants : le module d'émission neutronique (MEN) et son tube scellé où se produit la réaction de fusion deutérium-tritium (DT) émettrice des neutrons, l'alimentation THT, une unité de commande de proximité (PROX), et le logiciel de contrôle. Ce que nous désignons par GENIE16 est un abus de langage et réfère au MEN du générateur éponyme.

Le diamètre interne de la sonde simulée est de 10 cm, l'objectif fixé par l'industriel étant de descendre à moins de 3" (inférieur à 7.5 cm) de diamètre externe. La sonde simulée fait 1.55 m de longueur, son enveloppe d'acier inoxydable fait 2 mm d'épaisseur sur toute la virole, et 8 mm aux deux extrémités. La distance entre la source de neutrons et la face d'entrée de la partie active du détecteur (cavité remplie de gaz d' ^3He) est de 28 cm.

SODERN a développé plusieurs MEN pour le GENIE16 afin de répondre aux besoins spécifiques de ses clients. Nous en avons utilisé deux modèles, « GT » et « LL », utilisés successivement au LMN, mais c'est cette dernière version qui a servi pour les campagnes de mesure. Les modèles MCNP de la version GT nous ont été transmis dans le cadre des accords de non divulgation signés entre le CEA et SODERN. En raison des différences géométriques non négligeables pour le dispositif expérimental, nous avons dans le chapitre 3 (section 3.2.4) extrapolé le modèle de la version LL à partir des dimensions de notre tube et du modèle de la version GT.

Dans ce chapitre, les simulations numériques présentées utilisent le modèle MCNP du GENIE16 GT utilisé habituellement par le LMN [60]. Le générateur présente deux diamètres distincts, le plus important de 10 cm (voir repère 1 sur la figure 2.1), l'autre de 7.6 cm (voir repère 2 sur la figure 2.1) sur toute la partie accélératrice du tube. La cible en titane imprégné de tritium (voir repère 3 sur la figure 2.1) se situe à 15.15 cm de l'extrémité du générateur (face supérieure sur la figure ci-dessous).

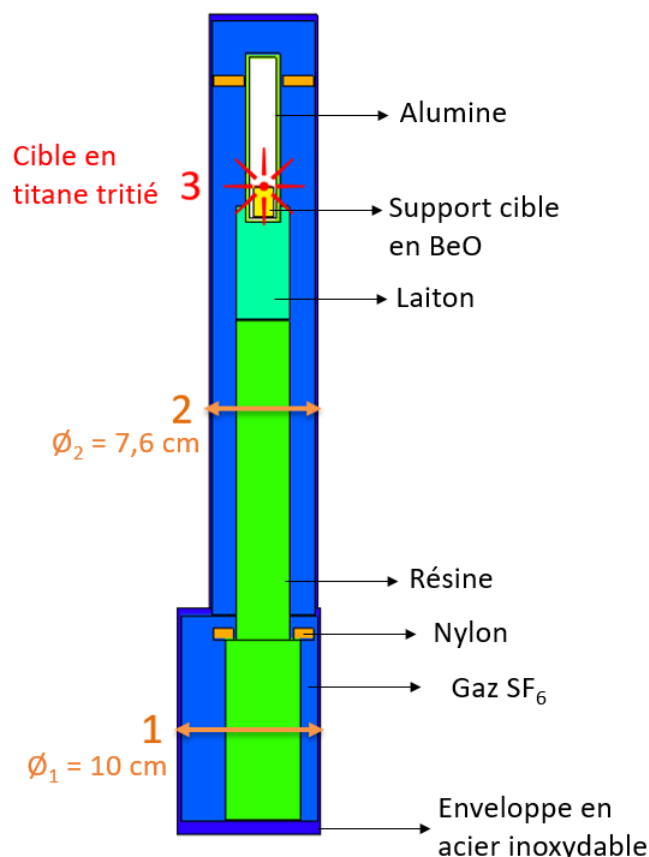


FIGURE 2.1 – Coupe transversale de la modélisation MCNP du MEN16 GT, réalisée via MCNPX-ViSED [23]

Lors des simulations présentées dans ce chapitre, l'émission neutronique est toujours considérée comme isotrope et mono énergétique. Le profil d'émission est une impulsion de neutrons de 14.1 MeV carrée d'une largeur de 50 μs . Par exemple, pour 1 seconde de tir avec une émission de 10^8 s^{-1} on multiplie les résultats des fichiers de sortie MCNP, exprimés par particule source, par 10^8 neutrons.

Remarque : La réaction de fusion deutérium-tritium mentionnée au chapitre 1 (réaction 1.3), avec une accélération préalable du deuton, induit une légère anisotropie d'émission neutronique dans l'axe du tube accélérateur [61]. Cependant, l'hypothèse de la source isotrope est tout à fait suffisante pour cette étude de faisabilité. On trouve de nombreuses publications sur le sujet [55] utilisant cette simplification. En revanche, dans le cas de la réalisation de tables précises pour l'étalonnage, il faudra tenir compte de cette réalité.

- Modélisation du bloc de détection épithermique

Le bloc de détection utilisé dans les différentes simulations a été optimisé afin d'avoir la meilleure sensibilité au signal dû aux neutrons prompts de fission (PFN). Historiquement le volume de détection des compteurs est favorisé par les constructeurs de sondes neutroniques. Les compteurs dédiés aux mesures de neutrons épithermiques occupent tout l'espace disponible et sont enveloppés directement de cadmium ou de carbure de bore (B_4C), sans modérateur. Des simulations, non présentées dans le document, nous ont montré que nous étions plus sensibles au signal d'intérêt avec un petit compteur (repère 1 sur la figure 2.2) mais en introduisant un thermalisant, ici du polyéthylène ($(\text{C}_2\text{H}_4)_N$, (repère 2 sur la figure 2.2), dans l'espace disponible entre le blindage en cadmium (repère 3 sur la figure 2.2) et le détecteur.

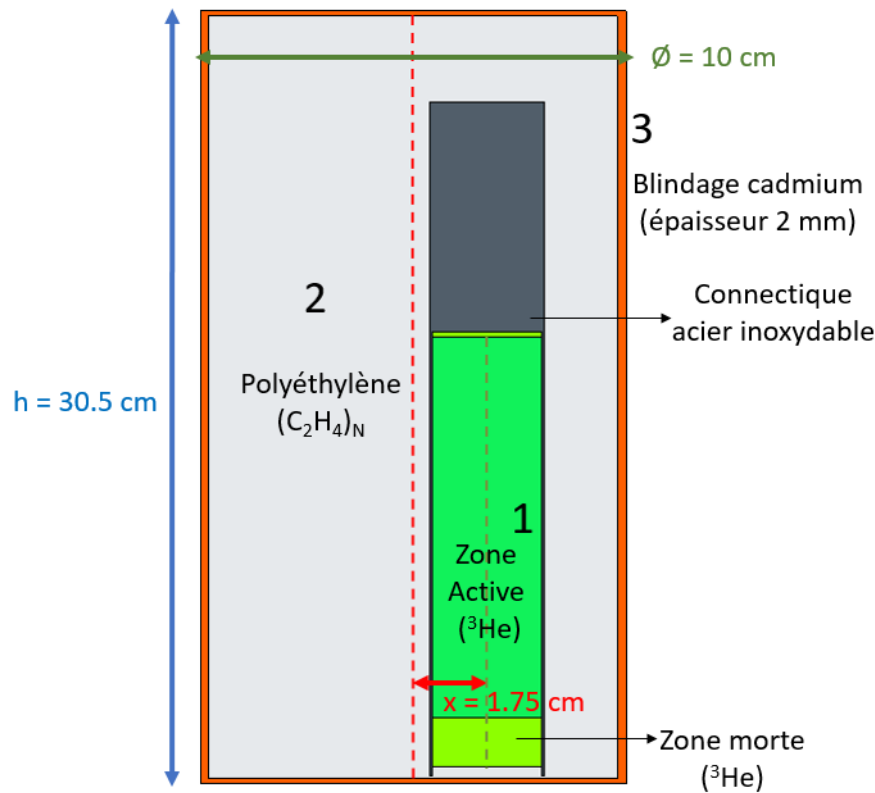


FIGURE 2.2 – Coupe transversale de la modélisation MCNP du bloc de détection, réalisée via MCNPX-ViSED [23]

Sur la figure 2.2, on peut voir le bloc de détection, cylindre d'une hauteur de 30.5 cm pour un diamètre de 10 cm, la partie orange (3) est un blindage de 2 mm en cadmium. La partie grisée (2) est un bloc de polyéthylène foré pour accueillir le compteur ^3He (1) dont la géométrie est celle du modèle « 30NH15 » (CANBERRA) [62]. Sa variante « 30NH15CS » [63] avec des additifs gazeux (CO_2 et Ar) pour optimiser le signal avec un amplificateur à collection de courant, qui sera aussi testée et préférée *in fine* au chapitre 3, ne diffère pas du point de vue du modèle géométrique.

Le compteur de 2.5 cm de diamètre (un peu moins d'1") a une zone active de 15 cm représentée en vert foncé, les neutrons qui interagissent y sont collectés. Les parties en clair sont des zones mortes, remplies d' ^3He mais sans collecte de charges. Le conditionnement et la connectique du compteur sont en gris sombre, modélisés en inox 18/10 (18 % de chrome et 10 % de nickel, le reste en fer). Ce modèle usuellement utilisé au LMN a montré une bonne adéquation avec les expériences.

Le compteur contient 6 bars d' ^3He pur, bien que les constructeurs ajoutent des additifs dont ils gardent généralement la composition exacte comme secret industriel. Dans le cadre de cette étude, cette faible différence n'est pas suffisamment significative pour entrer en compte car ces additifs n'ont pas de rôle quant à la génération du signal par absorption neutronique (ils améliorent l'amplitude et permettent de raccourcir la durée des impulsions).

Le calcul de comptage s'opère dans MCNP via la carte « FM » utilisée sur la zone active du compteur, qui permet de convoluer le flux neutronique par la section efficace de la réaction d'absorption (n,p) par les noyaux d' ^3He (réaction 103 sous MCNP), qui prédomine largement pour ce type de compteur. Néanmoins, nous avons calculé les comptages avec la section efficace totale correspondant à l'ensemble des réactions neutroniques (n,tot), y compris la diffusion élastique, soit la réaction 1 sous MCNP. En pratique seules les réactions déposant suffisamment d'énergie (environ 200 keV) pour produire un signal dont l'amplitude passe le seuil électronique sont mesurables, soit essentiellement la capture (n,p).

Afin de maximiser la sensibilité du bloc de détection au signal provenant de l'environnement à mesurer, et non du puits généralement rempli d'eau, il est possible de décentrer le détecteur par rapport à la position du bloc de polyéthylène (PE) qui entoure le compteur, de façon à optimiser la quantité de PE qui thermalise les neutrons rapides de fission à détecter (PE côté formation) et celle qui les réfléchit (PE côté puits) [21]. Nous avons mené une petite étude [64] d'optimisation montrant que le compteur doit être décentré de 1.75 cm vers le bord de l'outil pour obtenir la plus grande sensibilité à l'uranium présent dans la formation d'intérêt. Il y a alors 1.70 cm de PE côté formation et 5.11 cm côté puits. Les constructeurs de sondes neutroniques introduisent le plus souvent un blindage entre la source et le(s) ou détecteur(s) afin d'éviter une exposition directe aux neutrons rapides issus du générateur. Les caractéristiques de tels blindages sont variables, ils sont même parfois absents dans certains outils, ou présents entre deux ensembles de détecteurs mais pas entre le détecteur le plus proche de la source et cette dernière [54].

Nous avons décidé de ne pas utiliser de blindage dans notre outil principalement pour gagner de la place dans notre géométrie de mesure déjà très contrainte. De plus, parmi les matériaux de blindage envisagés, l'ajout de PE entre la source et le détecteur aurait diminué la sensibilité à la mesure de porosité hydrogène. Le choix d'un blindage en fer aurait, par expérience [44], produit de nombreux photoneutrons, suite à des interactions (n, γ) dans le fer et (γ ,n) dans le cadmium. Ces derniers auraient constitué un bruit de fond additionnel très pénalisant pour la mesure PFN.

2.2.3 Modélisation de l'environnement de mesure

Les simulations réalisées pour cette étude ont été calculées en milieu « infini », sur 6 m de hauteur et avec un diamètre de 6 m également. Nous avons simulés des dimensions plus grandes, ce qui ne change plus les résultats de simulation, mais augmente le temps de calcul.

- Modélisation du puits

Nous avons défini une géométrie de référence pour les simulations numériques qui sert de point de comparaison dans l'étude paramétrique présentée en partie 2.4. Cette géométrie correspond à un puits tubé avec du PVC, de 20 cm de diamètre interne. L'épaisseur de tubage est de 2 mm, l'espace intra annulaire de 1 mm et le *mudcake* (gangue de boue qui se crée sur les parois du puits lors du forage) de 3 mm, ce dernier étant modélisé comme de l'eau de densité 1.6. Une lame d'eau de 0.1 mm est laissée entre le bord de la sonde et le tubage sur l'arête de contact entre les deux cylindres. Au moment de fixer notre géométrie de référence, nos partenaires d'ORANO Mines nous ont demandé de nous intéresser à l'effet de la salinité du puits, et plus particulièrement du chlore sur le signal PFN. Par conséquent, le puits et l'espace intra annulaire sont modélisés avec de l'eau salée à 35 g.kg^{-1} (salinité moyenne des océans [65]) de saumure, de façon volontairement pénalisante pour la mesure PFN. De l'eau douce a cependant été laissée dans les pores des formations simulées sauf dans la partie 2.4.6, dans l'étude liée à la salinité. En réalité, les puits des mines ISR du Kazakhstan sont remplis par de l'eau douce.

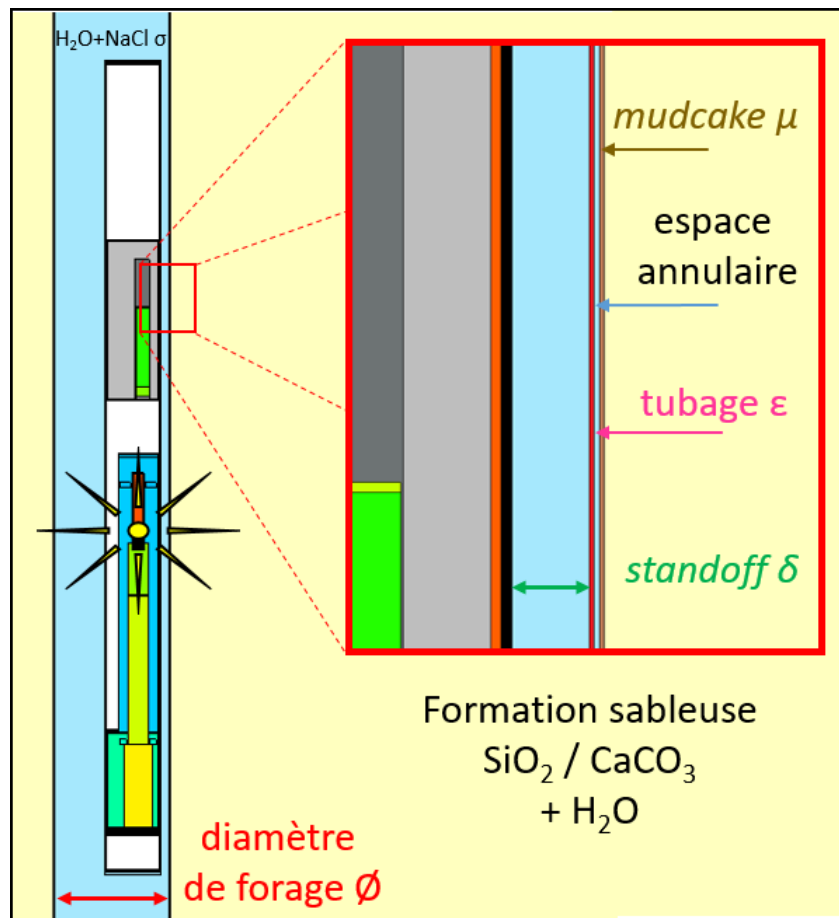


FIGURE 2.3 – Coupe transversale d'une géométrie de simulation proche de la référence ($\delta = 2 \text{ cm}$ au lieu de 0.1 mm), réalisée via MCNPX-ViSED [23].

Ce diamètre et cet espacement de référence permettent de faire varier l'épaisseur de *mudcake* dans des ordres de grandeur réalistes [66], ce dernier dépassant rarement 1 cm d'épaisseur. Pour l'épaisseur de tubage, nos partenaires d'ORANO ont pour habitude de calculer des tables avec des épaisseurs de 2, 4 et 6 mm d'acier inoxydable et de PVC. Enfin, la salinité est un paramètre qui varie significativement d'un environnement à l'autre [55].

Remarque : l'espace intra annulaire est choisi arbitrairement comme une lame d'eau de 1 mm d'épaisseur qui reste constante pour chaque simulation. La figure 2.3 représente les différentes grandeurs évoquées et leur variable correspondante. Le *standoff* (espacement entre la sonde et la paroi du tubage) vaut ici 2 cm pour des questions de lisibilité. Dans la géométrie de référence il n'est en réalité que de 0.1 mm.

- Modélisation des formations géologiques

Nos partenaires industriels d'ORANO nous ont donné les caractéristiques de leur matrice géologique usuels au Kazaksthan. Cette dernière sert de référence pour les différentes études de ce chapitre : matrice uniforme, composée de silice SiO_2 avec une teneur en uranium de 1000 ppm_U et une porosité hydrogène de 20 % (les pores occupent une fraction de 20 % du volume et sont saturés à 100 % d'eau). Les différents métaux et absorbants neutroniques naturellement présents ne sont pas considérés dans le cas de référence mais font l'objet d'études dédiées. La minéralogie fine de chaque site minier devant être prise en considération.

Lors de la modélisation des roches dans MCNP, la composition de la phase solide de la formation (SiO_2 avec l'uranium) est calculée en premier, afin que la teneur en uranium soit la fraction massique de cette partie. Ensuite, l'eau est ajoutée dans la carte des matériaux et les fractions atomiques sont recalculées pour respecter la convention définie par l'équation 1.1 du chapitre 1. La composition de la roche est donc calculée à volume constant pour garantir les deux conventions simultanément¹. La densité des cellules qui correspondent à la formation géologique est calculée avec la formule suivante [67] :

$$\rho_b = \rho_S \times (1 - \Phi_H) + 1 \times \Phi_H \quad (2.1)$$

Avec ρ_b la densité apparente (*bulk density*), ρ_s la densité de la phase solide et Φ_H la porosité hydrogène (fraction de volume occupée par les pores saturés en eau).

Applications numériques : une formation de silice à 0 % de porosité totale possède une densité de 2.65, alors que sous forme de grains de sable, si la porosité totale est de 40 % (fraction de volume) et si les pores sont occupés par de l'air, la densité apparente est alors :

$$\rho_b = 2.65 \times (1 - 0.4) = 1.59$$

Si les pores sont occupés par de l'eau alors la densité apparente est :

$$\rho_b = 2.65 \times (1 - 0.4) + 1 \times 0.4 = 1.99$$

Notre formation de référence a une porosité de 20 % et les pores sont totalement remplis d'eau (c'est à dire une porosité hydrogène de 20 %), sa densité est alors :

$$\rho_b = 2.65 \times (1 - 0.2) + 0.2 \times 1 = 2.12 + 0.2 = 2.32$$

1. la porosité physique est la fraction du volume total occupé par les pores, alors que la teneur en uranium est la fraction massique de la partie solide de la formation, pores exclus.

Pour finir, dans le cas particulier d'une formation de silice non entièrement saturée d'eau avec une porosité totale de 40 % et une porosité hydrogène de 20 %, la densité est alors :

$$\rho_b = 2.65 \times (1 - 0.4) + 0.21 = 1.79$$

On voit alors que la densité apparente de la formation géologique pour une même porosité hydrogène (mesurée avec la sonde neutronique) varie significativement lorsqu'elle n'est pas saturée.

Remarque : Sauf mention contraire, nous considérerons toujours une formation saturée à 100 % en eau avec la porosité hydrogène égale à la porosité totale. Pour une matrice de silice, la densité de la phase solide est toujours de 2.65, mais une matrice de calcite (CaCO_3) a une densité de 2.71 pour cette même phase.

- Teneur en puits et teneur en échantillon

La teneur massique en uranium, selon les conventions des géologues, peut être différente de celle mesurée en raison de la présence de la phase liquide dans la formation géologique. En effet, il est d'usage de considérer la concentration massique en uranium (en ppm_U) de la fraction solide, ce qui correspond à un échantillon sec, car les mesures en laboratoire sont effectuées après séchage. Cependant, la mesure neutronique *in situ* est sensible à la concentration en uranium de toute la matrice géologique interrogée, fluide compris. Nous rencontrons alors un problème d'étiquetage : la mesure en puits est sensible à une teneur en uranium donnée, qui dépend de la porosité et de la densité de la matrice. Or, un carottage de cette même matrice ne donnera pas la même valeur de teneur lors d'une mesure sur paillasse. Les concentrations en ppm_U ainsi affichées dans tout le document correspondent donc à la teneur usuelle de la partie sèche (convention des géologues, soit ce qui sera mesuré sur paillasse *in fine*) et non à la concentration massique en uranium *in situ*. Cette dernière est implémentée dans la simulation pour avoir des résultats comparables à l'expérience, en terme de mesure neutronique (voir l'annexe C).

Exemple : une matrice sèche de SiO_2 de densité 2.65 à 2000 ppm_U et avec une porosité hydrogène de 30 % présente une concentration en uranium dans toute la matrice, fluide compris, correspondant à seulement 1722 ppm_U (soit 14 % de moins) et c'est cette dernière valeur qui est modélisée de façon à simuler correctement le signal mesuré.

La figure 2.4 montre l'évolution de ce décalage entre la valeur de teneur conventionnelle et celle des simulations, qui dépend de la porosité hydrogène mais aussi de la densité de la matrice solide de la formation (voir démonstration et formules en annexe C). Les courbes sont proches car la différence relative de densité entre les matrices est faible. Elles sont calculées analytiquement à partir de l'équation A.11 qui découle des conservations du volume et de la masse des matériaux.

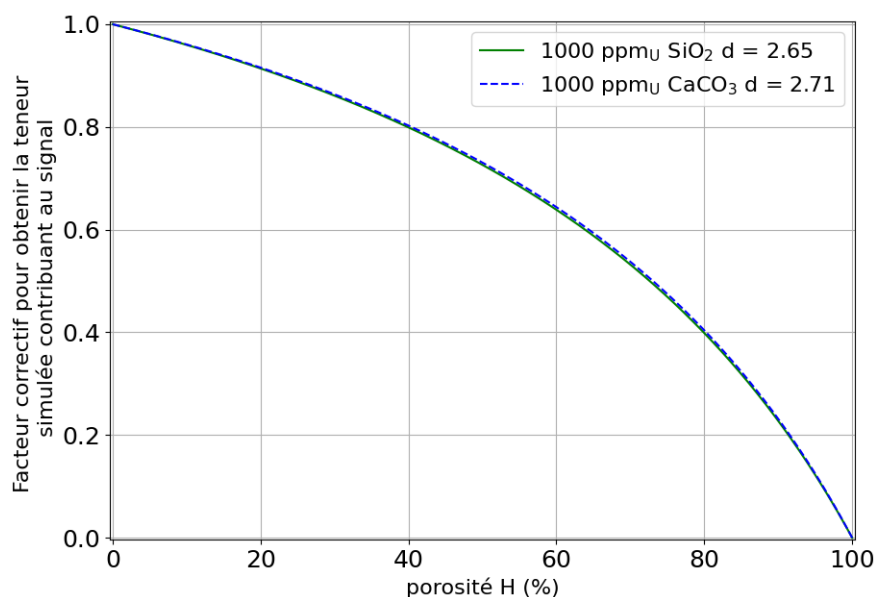


FIGURE 2.4 – Correction de la teneur en uranium conventionnelle de matrices sèches de SiO₂ et CaCO₃ en fonction de la porosité hydrogène pour obtenir la teneur simulée utile au signal.

2.2.4 Réduction de variance

Lors d'une première étude, nous avons constaté que la statistique de simulation était clairement insuffisante pour exploiter correctement les résultats liés à la teneur en uranium. Le calcul du cas de référence à 20 % de porosité hydrogène et 1000 ppm_U conduisait alors à une incertitude relative du calcul Monte Carlo de 26 % pour 410 h de CPU. Pour diviser par 10 l'incertitude de calcul il aurait fallu augmenter par 100 le temps de calcul, ce qui n'était pas envisageable pour toute l'étude. Ce même calcul opéré avec l'utilisation des fenêtres d'importances MCNP nous donne une incertitude relative de 2.5 % sur la mesure de teneur en uranium pour 1090 h CPU, soit un gain d'un facteur 40 à temps CPU équivalent.

Le principe de cette méthode est de multiplier les particules simulées contribuant le plus au signal d'intérêt (ici le comptage dans la zone temporelle PFN) et de supprimer celles qui ont le moins de chance d'y contribuer, tout en adaptant leur poids pour ne pas fausser le résultat final. La statistique de calcul sur le signal d'intérêt en est grandement améliorée. Pour ce faire, il faut déterminer au préalable les éléments de volume de la simulation qui ont la plus grande importance pour le résultat attendu. Dans les éléments de volume (voxels) de faible intérêt, les particules incidentes auront des chances d'être tuées (par un mécanisme dit de « roulette russe »), au contraire des voxels d'intérêt où des particules supplémentaires ont des chances d'être générées (mécanisme dit de « *splitting* »), avec un poids réduit pour ne pas biaiser le résultat.

On lance avec MCNP une première simulation avec un découpage en volumes réguliers (en géométrie cylindrique par exemple, ce découpage est différent des cellules décrivant les éléments du dispositif modélisé) pour calculer les importances de ces voxels. Le calcul doit se faire sur une géométrie du dispositif proche de celles attendues par la suite, ici notre cas de référence, et doit durer suffisamment longtemps pour avoir une bonne précision sur les importances des différents voxels. Nous avons donc lancé un calcul long avec 5×10^{10} particules (soit 7500 h CPU) qui a servi par la suite à toute l'étude présentée dans ce chapitre.

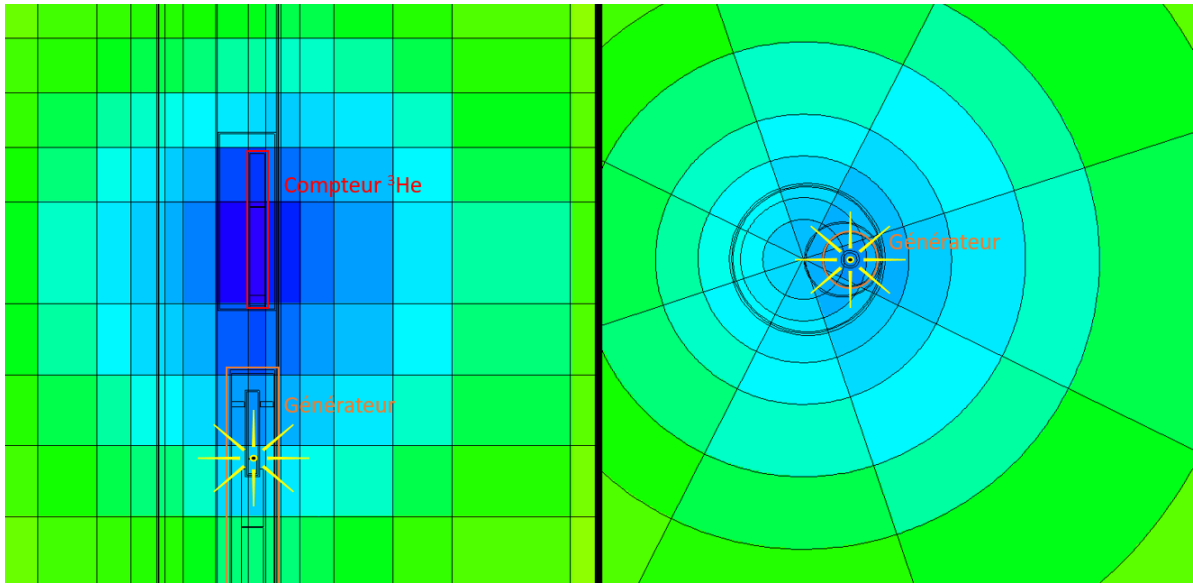


FIGURE 2.5 – Visualisations en coupes (verticale à gauche et horizontale à droite) des éléments de volume de la simulation selon leur importance, réalisée via MCNPX-ViSED [23].

La figure 2.5 est une représentation des cartes d'importances calculées par MCNP, où les volumes d'intérêt sont en bleu (foncé à clair) et ceux de moindre importance sont en vert (foncé à clair également, tendant vers le jaune). Le calcul des poids a été optimisé pour la mesure PFN en précisant à MCNP la fenêtre de temps du signal à favoriser : ici entre 1 et 5 ms après le début de l'impulsion, soit la zone où le signal PFN est mesurable. Cette représentation nous montre l'espace dans lequel les neutrons incidents utiles au signal évoluent, c'est-à-dire la fonction de sensibilité spatiale de la sonde [54]. On remarque clairement, au-delà de la logique décroissance de la sensibilité avec l'éloignement radial ou vertical par rapport à la sonde, une asymétrie angulaire car cette dernière est décentrée dans le puits, plaquée contre la paroi. L'essentiel du signal utile provient ainsi d'un cône de 120° centré sur le détecteur et pointant vers le bord proche de la roche. On note aussi que le signal provient majoritairement de l'environnement du détecteur (voir coupe verticale) et des premiers 10 cm de formation géologique. Néanmoins, en face du détecteur, une partie non négligeable des premiers 20 cm contribue au signal. Enfin, on constate que l'essentiel des particules émises vers le bas, à l'opposé du bloc de détection, n'ont que très peu de chances de contribuer au signal utile.

2.3 Mesure conjointe de la porosité hydrogène et de la teneur en uranium

2.3.1 Mesure de la porosité hydrogène

Dans le contexte de l'invention, la mesure de la porosité hydrogène est dite épithermique (partie 1.2.3) puisque le bloc de détection est entouré de cadmium, le dispositif ne mesure que les neutrons issus du générateur qui ne sont pas encore totalement thermalisés. Le générateur de neutrons pulsé émet des neutrons rapides de 14.1 MeV que l'hydrogène présent dans l'environnement diffuse, tout en les ralentissant, et absorbe partiellement. Dans notre cas, plus la quantité d'hydrogène dans la formation géologique est importante, plus le signal mesuré est atténué car les neutrons thermalisés sont absorbés par les noyaux d'hydrogène et par le cadmium entourant le bloc de détection. La mesure de porosité se fait ici par un comptage intégré sur une fenêtre nommée w_H qui s'étend, comme le montre la figure 2.6, de 80 à 350 μs après le début du tir du générateur (soit 30 à 300 μs après la fin de l'impulsion de 50 μs).

Remarque : Il est théoriquement possible de faire commencer w_H pendant l'impulsion si l'électronique d'acquisition le permet. Néanmoins, la statistique de mesure est amplement suffisante dès quelques secondes d'acquisition (de temps total) avec cette fenêtre. C'est la mesure des neutrons prompts de fission de l'uranium, dans une fenêtre plus distante de l'impulsion du générateur, qui est limitante de ce point de vue.

Sur la figure 2.6, on peut voir que l'amplitude des signaux dépend significativement de la porosité hydrogène mais très faiblement de la teneur en uranium, du début de l'impulsion à la fin de w_H , avec moins de 0.7 % d'écart entre les points à 250 ppm_U et ceux à 10 000 ppm_U. La limite finale de la fenêtre w_H est fixée à 350 μ s pour que la méthode ne soit pas affectée par la teneur en uranium. En effet, le signal provenant des neutrons de fission induits dans l'uranium (PFN) émerge de celui dû aux neutrons du générateur à la fin de w_H pour les teneurs les plus importantes (10 000 ppm_U sur la figure 2.6). Cette indépendance du signal permettant la mesure de porosité hydrogène vis-à-vis de la teneur en uranium est cruciale pour la méthode générale.

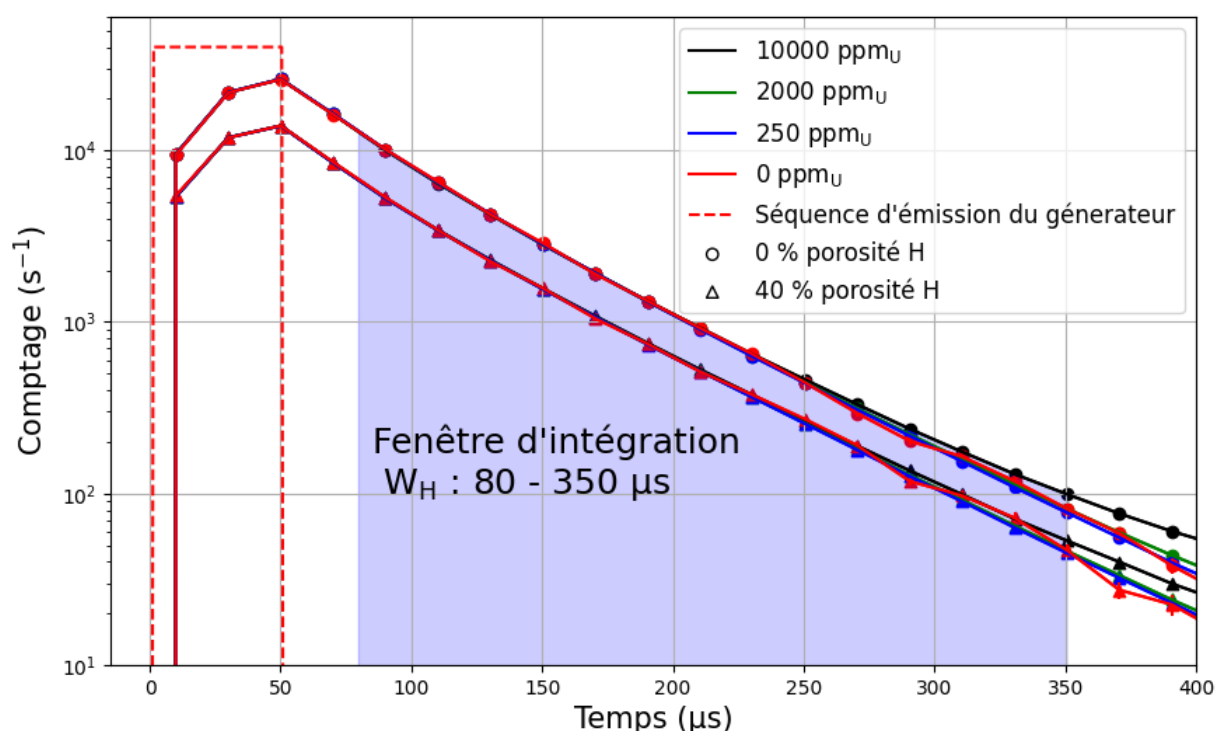


FIGURE 2.6 – Fenêtre d'intégration w_H pour la mesure de porosité hydrogène. Le signal neutronique est intégré pendant 1 s sur 200 cycles (soit une fréquence de répétition du générateur de 200 Hz) avec des impulsions de durée 50 μ s et une émission neutronique moyenne de 10^8 s⁻¹.

La figure 2.7 représente la zone temporelle du chronogramme neutronique autour de la fenêtre w_H mais se consacre aux simulations réalisées sans uranium. Les deux courbes bleues, sont les mêmes que les signaux sans uranium de la figure 2.6. Les courbes en rouge et orange sont les résultats tenant compte des interactions des neutrons ainsi que des rayons γ qu'ils induisent (MCNP en mode « N P », les neutrons et les photons sont alors transportés). Le code tient alors compte des différentes réactions de capture radiative et de diffusion inélastique, qui induisent notamment des rayonnements γ de 2.2 MeV sur l'hydrogène et 4.4 MeV sur le carbone. Bien que les compteurs ³He soient peu sensibles aux rayons γ , ces rayonnements peuvent provoquer des réactions photo-nucléaires de type (γ, n) quand ils ont des énergies de plusieurs MeV (> 6 MeV).

Les diffusions inélastiques se produisent uniquement pendant les impulsions du générateur, les neutrons incidents étant rapides. Les captures radiatives se produisent tout au long de la séquence (entre 0 et 5 ms), ce qui produit des photoneutrons sur l'entièreté du chronogramme. Ces derniers s'ajoutent aux neutrons rétrodiffusés du générateur et des PFN que l'on cherche à mesurer. C'est une des composantes du « bruit de fond actif » (c'est à dire le signal sans uranium), avec les fuites neutroniques à travers le blindage en cadmium.

Il est donc crucial de s'assurer que les photoneutrons ne constituent pas un bruit de fond actif trop important par rapport au signal utile, ce qui est potentiellement le cas lors de la mesure de teneur en uranium. En ce qui concerne la mesure de porosité hydrogène, on peut voir sur la figure 2.7, en comparant les cas avec et sans la simulation des photoneutrons (respectivement notés « bruit de fond actif » et « 0 ppm_U »), que ces derniers ajoutent une faible contribution au signal dans la fenêtre w_H , de 2 à 5 % en fonction de la porosité.

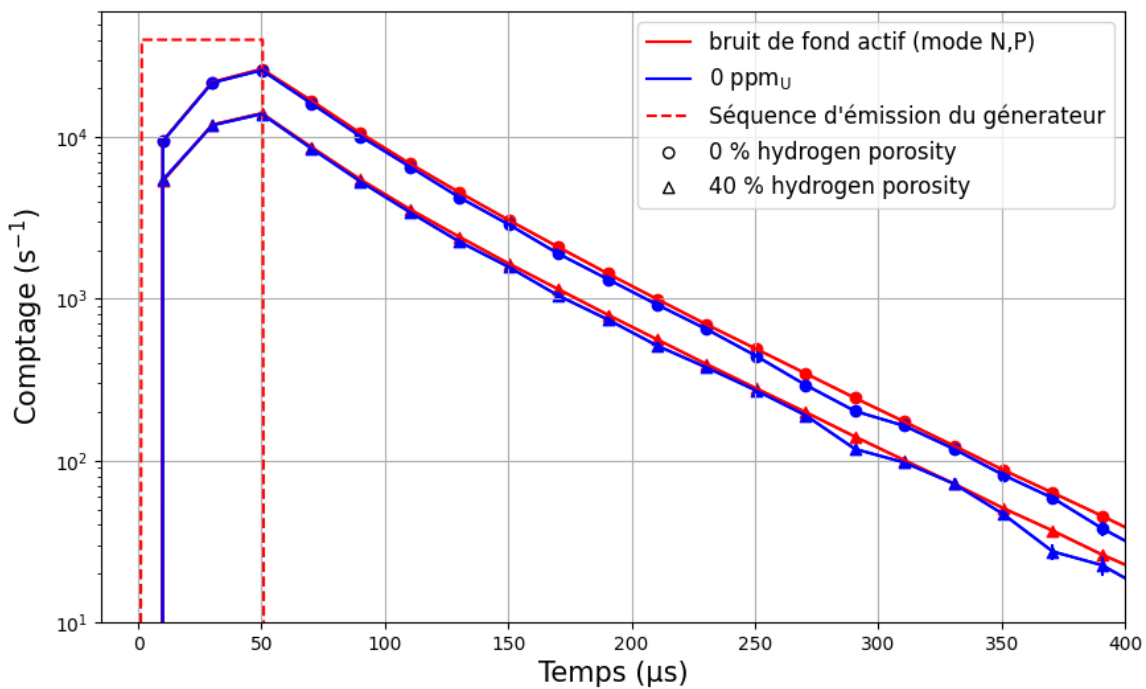


FIGURE 2.7 – Comparaison des chronogrammes de neutrons rétrodiffusés avec et sans bibliothèques photo-nucléaires, c'est à dire avec ou sans la production de photoneutrons par réactions (γ,n).

La figure 2.8 représente l'évolution du signal intégré sur la fenêtre w_H pour des porosités hydrogène variant de 0 à 40 % et pour différentes teneurs en uranium. Cette courbe est comparable à celles qu'on trouve dans la littérature lors des premières mesures de porosité hydrogène épithermique [21], à ceci près que le problème de statistique de mesure disparaît du fait de la mesure proche de l'impulsion du générateur contrairement aux mesures historiques réalisées avec des sources isotopiques de neutrons (AmBe) [68]. Le comptage obtenu est presque divisé par 2 entre 0 % et 40 % de porosité hydrogène, montrant la bonne sensibilité de la méthode à cette grandeur. On observe néanmoins un début de saturation de l'effet de l'hydrogène dans le milieu à forte porosité, la sensibilité étant la plus grande entre 0 et 10 %. Les simulations réalisées pour différentes teneurs en uranium donnent des comptages similaires, aux incertitudes près (les barres d'erreur sont ici aussi confondues dans les points), ce qui nous permet de dire que cette méthode de mesure est insensible à une teneur en uranium inférieure ou égale à 10 000 ppm_U. On rappelle que les incertitudes statistiques relatives de calcul liées à la mesure de porosité sont très faibles, inférieures à 1 %.

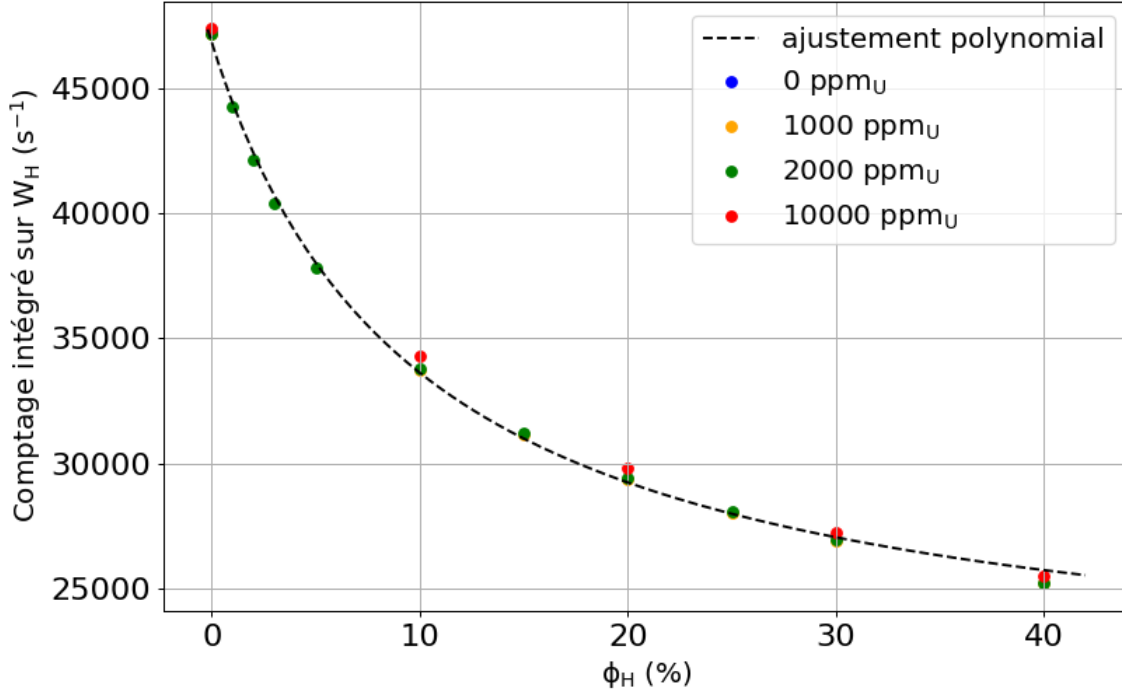


FIGURE 2.8 – Mesure de porosité hydrogène épithermique avec un seul détecteur. Les incertitudes de simulation sont ici incluses dans l'épaisseur des points.

Un ajustement a été réalisé (courbe en noir sur la figure 2.8) avec une méthode des moindres carrés. La fonction donnant les meilleurs résultats, avec un R^2 de 0.9988, est un polynôme en $\frac{1}{\Phi_H}$:

$$S_{w_H}(\Phi_H) = a \times \frac{1}{\Phi_H + \Phi_0} + b \quad (2.2)$$

$\Phi_0 = 9.96$ %, le signal diverge donc pour une porosité de -9.96 %, les coefficients sont respectivement : $a = 2.62 \times 10^5 \text{ \%}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ et $b = 2.05 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$.

Il est important de souligner que cette technique n'a pas été mise en œuvre auparavant en raison des forts taux de comptage pendant et juste après l'impulsion. En effet, pour une porosité inférieure à 5 %, le taux de comptage dépasse 10^6 s^{-1} pendant l'impulsion pour un taux d'émission neutronique moyen de 10^8 s^{-1} qui correspond, avec un rapport cyclique de 10 %, à un taux d'émission neutronique instantané pendant l'impulsion de 10^9 s^{-1} . Selon l'amplificateur utilisé, le temps de récupération de la chaîne d'acquisition après l'impulsion peut durer plusieurs millisecondes, rendant impossible la mesure de porosité. La faisabilité d'une telle mesure a cependant été démontrée lors d'une campagne expérimentale menée au LMN [6], présentée dans le chapitre 3. Nous avons réussi à obtenir un taux de comptage de $4.8 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ pendant l'impulsion avec une émission instantanée de $8.2 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$, tout en enregistrant seulement 38 % de pertes de comptage dues au temps mort. Ces mesures ont été réalisées avec une fréquence de tir du générateur de 200 Hz avec un compteur à ^3He de type 30NH15CS, optimisé pour la collection de courant, et un amplificateur de courant de type G-ADSF10 [44]. Ce temps mort décroît ensuite dans les 200 μs après l'impulsion avec la diminution du taux de comptage. La mesure de porosité est donc réalisable, que ce soit pendant ou après l'impulsion du générateur. Il est également possible de corriger le temps mort, comme nous le verrons au chapitre 3.

2.3.2 Mesure de la teneur en uranium

La mesure de teneur en uranium utilisée dans le cadre de l'invention est basée sur la détection des neutrons prompts de fissions (PFN) induites par les neutrons du générateur, une fois ces derniers thermalisés, sur les noyaux d' ^{235}U présents dans la formation géologique. Dans les techniques mises en œuvre usuellement pour cette mesure, l'usage prévoit au moins un deuxième détecteur sensible aux neutrons thermiques. La décroissance de ce signal est principalement affectée par la porosité hydrogène, la lithologie et les absorbants neutroniques. Faire un ratio entre les mesures thermiques et épithermiques, on parle de mesure compensée, permet de s'affranchir de tels effets. Une alternative consiste à mesurer les rayons γ issus des captures radiatives des neutrons thermiques. Dans le cadre de notre méthode innovante, c'est le signal intégré dans la fenêtre w_H qui permet d'effectuer cette compensation.

Les PFN sont induits par les neutrons thermiques présents dans la formation. Ces derniers ont une constante de décroissance beaucoup plus grande que celle des neutrons épithermiques, voir figure 2.9 (voir dans les fenêtres w_H et w_{PFN} respectivement). Le signal issu des neutrons thermiques provenant du générateur s'estompe après plusieurs millisecondes, alors que celui correspondant aux neutrons épithermiques a totalement disparu après 1 ms. Le signal mesuré provient alors uniquement des neutrons prompts de fissions induites par les neutrons thermiques sur les noyaux d' ^{235}U présent dans la formation. C'est sur ce principe que repose la méthode historique de mesure des PFN, appelée aussi DDT (*Differential Die-away Technique*) [69].

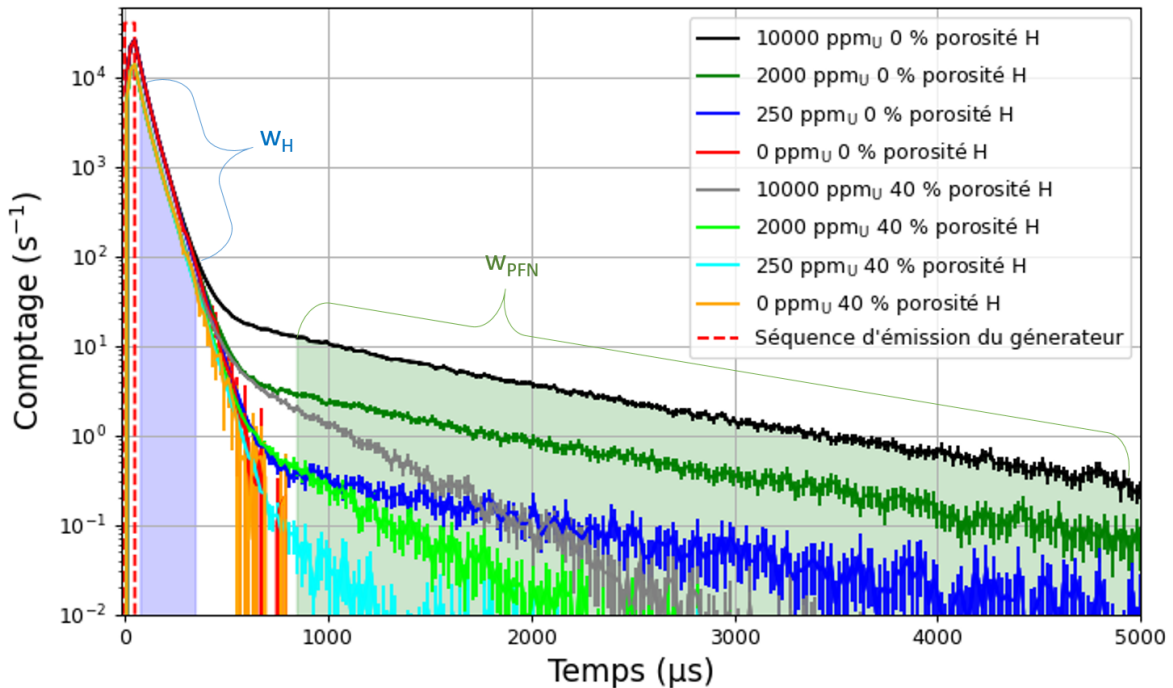


FIGURE 2.9 – Mesure PFN de la teneur en uranium. Le signal neutronique est intégré pendant 1 s sur 200 cycles (soit 200 Hz et des cycles de 5 ms) avec des impulsions de durée $50 \mu\text{s}$ (taux de travail de 1 %) et une émission neutronique moyenne de 10^8 s^{-1} .

La figure 2.9, à l’instar de la figure 2.6, montre les chronogrammes neutroniques intégrés de 200 cycles (1 s de mesure à 200 Hz) suite à des impulsions de $50 \mu\text{s}$ (taux de travail de 1 %) et une émission neutronique moyenne de 10^8 neutrons s^{-1} . On peut y voir les signaux simulés pour différentes teneurs en uranium, à 0 et 40 % de porosité hydrogène. On voit que l’amplitude du signal PFN est proportionnelle à la teneur en uranium, à porosité égale, et que la décroissance des signaux PFN, et par suite leur intégrale, dépendent fortement de la porosité hydrogène. Par ailleurs, les deux signaux des simulations sans uranium (courbes rouge et orange) disparaissent environ $900 \mu\text{s}$ après l’impulsion, le ratio signal sur bruit étant même exploitable dès $850 \mu\text{s}$ pour chaque cas simulé ici. La fenêtre w_{PFN} s’étend jusqu’à l’impulsion suivante pour intégrer un maximum de signal, et donc améliorer la statistique sur le signal PFN.

Remarque : Les incertitudes de simulation sont représentées à 2σ afin d’illustrer la différence entre la statistique de simulation avant la fenêtre w_{PFN} , puis au début et à la fin de cette dernière. On s’aperçoit alors de la grande disparité des précisions de simulation quand on passe d’un cas favorable, à haute teneur en uranium et faible porosité hydrogène, à son opposé.

Le signal PFN a la même constante de décroissance que les neutrons thermiques dans la formation, fonction des différents absorbants neutroniques et notamment de l’hydrogène. Quand la statistique le permet, il est en théorie possible d’utiliser la constante de décroissance du signal PFN afin de remonter à la porosité hydrogène (voir annexe D).

Dans la plupart des géométries simulées, la fenêtre w_{PFN} présente un très faible nombre de coups en l’absence d’uranium. On peut donc intégrer directement le signal en présence d’uranium et définir un coefficient d’étalonnage CE_{PFN} (en $\text{s}^{-1} \cdot \text{ppm}_U^{-1}$) qui correspond au coefficient directeur de la droite reliant le comptage sur w_{PFN} à la teneur, pour un environnement donné.

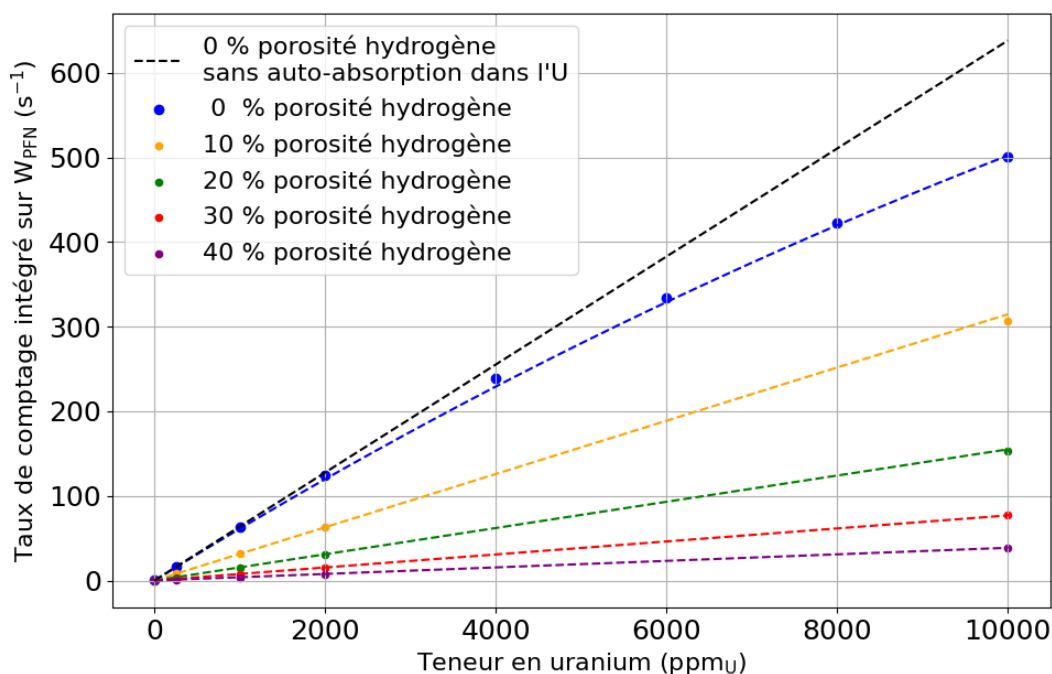


FIGURE 2.10 – Évolution du comptage PFN en fonction de la porosité hydrogène et de la teneur en uranium.

La figure 2.10 représente le comptage intégré sur 1 s dans la fenêtre w_{PFN} (de 850 à 5000 μs après le début de l'impulsion) pour différentes teneurs en uranium et porosités hydrogène. Le coefficient directeur des différentes droites diminue très fortement entre 0 et 40 % de porosité, on note un facteur 10 entre ces valeurs extrêmes. En première approximation, le comptage sur w_{PFN} est proportionnel à la teneur en uranium pour une même porosité. On voit cependant que ce n'est pas le cas pour une formation sèche à 0 % de porosité hydrogène (densité de 2.65) où un effet d'auto-atténuation du signal dû à l'uranium (absorption des neutrons thermiques interrogateurs par l'uranium, c'est à dire un phénomène d'autoprotection) est visible pour une teneur de 10 000 ppm_U . Cet effet est également présent pour les porosités non nulles, mais il est compensé par le fait que les fissions sont induites beaucoup plus près de la sonde en raison de la thermalisation par l'hydrogène et donc par une meilleure efficacité de détection des PFN.

2.3.3 Correction de la teneur en uranium par la porosité hydrogène

Lorsque l'on représente les pentes des différentes simulations présentées sur la figure 2.10 en fonction de la porosité hydrogène associée, nous obtenons la figure 2.11 :

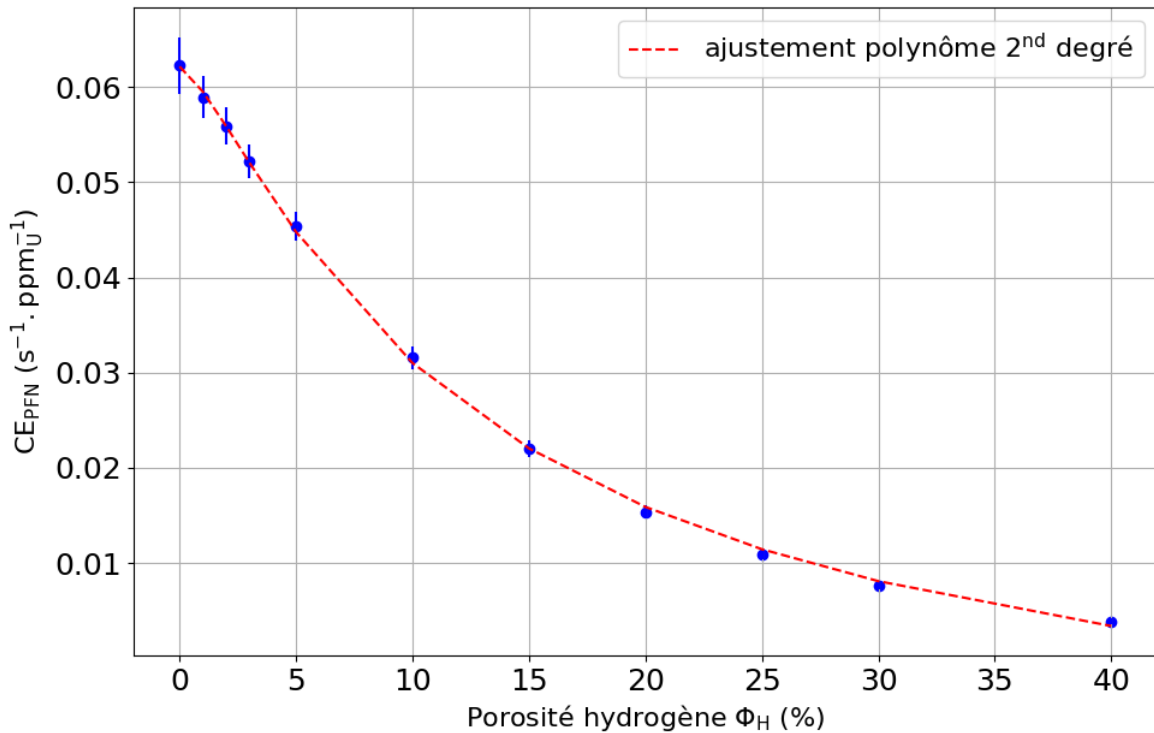


FIGURE 2.11 – Évolution du coefficient d'étalonnage CE_{PFN} en fonction de la porosité hydrogène.

Le comportement du coefficient d'étalonnage CE_{PFN} est bien modélisé par un polynôme en $\frac{1}{\Phi_H}$, on peut écrire de façon générale :

$$CE_{PFN}(\Phi_H) = \sum_{i=0}^n k_i \left(\frac{1}{\Phi_H + \Phi'_0} \right)^i \quad (2.3)$$

L'ordre 2 du polynôme 2.3 est suffisant pour décrire l'évolution des coefficients tracés sur la figure 2.11, avec un R^2 de 0.9996. Les coefficients associés sont alors : $\Phi'_0 = 6.49$ %, $k_0 = -1.55 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1} \cdot \text{ppm}_U^{-1}$, $k_1 = 0.937 \text{ \%}^{-1} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{ppm}_U^{-1}$, et $k_2 = -2.81 \text{ \%}^{-2} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{ppm}_U^{-1}$.

Ces valeurs dépendent des caractéristiques de la sonde simulée mais aussi de l'environnement de référence. Au cours du processus d'industrialisation de l'outil, il faudra les recalculer précisément avec le design réel de la sonde et pour les différents types de puits à explorer. Finalement, on obtient la valeur de la teneur en uranium C_{mU} en divisant le comptage net obtenu sur w_{PFN} par le coefficient d'étalonnage CE_{PFN} :

$$C_{mU} = \frac{S_{W_{PFN}} - B_{PFN}}{CE_{PFN}(\Phi_H)} \quad (2.4)$$

avec respectivement $S_{W_{PFN}}$ et B_{PFN} le comptage brut mesuré sur w_{PFN} et le bruit de fond actif (en l'absence d'uranium). Ici la fenêtre w_{PFN} a été optimisée de sorte à ce que le bruit de fond soit de 0. Nous verrons dans le chapitre 3 que ce n'est pas le cas en pratique.

2.4 Étude paramétrique

2.4.1 Cadre de l'étude paramétrique

Dans cette partie, nous présentons les résultats d'une étude sur les principaux paramètres influençant les comptages réalisés sur les fenêtres w_H et w_{PFN} . Contrairement aux études préliminaires ayant été réalisées pour la faisabilité du brevet en puits nu (*open hole*), cette étude paramétrique est réalisée en forage tubé (*cased hole*) afin de se rapprocher des conditions réelles d'utilisation.

Les paramètres ayant les effets *a priori* les plus marqués sont ceux affectant directement la quantité d'hydrogène dans l'environnement direct, à savoir les premiers centimètres autour de la sonde. Le diamètre de tubage (et donc du forage) ainsi que l'écartement de la sonde par rapport à la paroi (*standoff*) agissent directement sur le volume d'hydrogène au voisinage du dispositif dans le cas d'un puits en eau.

Le matériau utilisé pour tuber le puits et son épaisseur, ainsi que celle de la gangue de boue sur la paroi du puits (*mudcake*), peuvent aussi contribuer, dans une moindre mesure, aux fluctuations de la quantité d'hydrogène et sont donc également étudiés. La salinité de l'eau, la densité de la formation et sa composition, silice SiO_2 ou calcite $CaCO_3$, peuvent aussi affecter le signal. Enfin, deux matériaux distincts de tubage sont comparés, le PVC et l'acier inoxydable.

Cette étude paramétrique n'est pas exhaustive en raison de la grande combinatoire de cas générés par le nombre important de paramètres. Chacun d'entre eux varie ici indépendamment des autres, autour des paramètres de la géométrie de référence présentée en 2.2.3 qui se rapproche de cas typiques d'utilisation de l'outil. Ainsi, les variations dans les comptages sur les deux fenêtres d'intégration dues à chaque paramètre, représentent l'incertitude liée à la méconnaissance dudit paramètre.

Exemple : pour un *mudcake* d'épaisseur 0.3 cm, une variation de cette dernière de ± 0.3 cm est dans la plage de ce que l'on peut rencontrer dans un environnement naturel.

Afin de limiter la combinatoire de simulation, et les coûts associés, les différents paramètres sont simulés avec des teneurs de 0, 1000, et 2000 ppm_U et des porosités allant de 10 à 30 % par pas de 5 %. Les porosités hydrogènes extrêmes de 0 et 40 % sont plus rarement rencontrées en pratique. Elles seront néanmoins prises en compte ultérieurement avec la géométrie définitive de la sonde neutronique.

2.4.2 Effet du diamètre de tubage

Lors de cette étude, le diamètre de tubage varie de 12 à 32 cm. Le diamètre agit fortement sur la quantité d'hydrogène présente au voisinage direct de la sonde, car le puits est rempli d'eau, et par conséquent affecte conséquemment les comptages mesurés sur w_H et w_{PFN} .

- Effet sur la mesure de porosité hydrogène

La figure 2.12 montre l'évolution des comptages sur w_H en fonction de la porosité hydrogène de la formation et du diamètre de tubage (à 1000 ppm_U). On voit que la sensibilité de l'outil à l'hydrogène présent dans la matrice géologique à interroger est la plus importante à faible diamètre. La réponse tend à saturer lorsque le diamètre augmente car le puits est rempli d'eau.

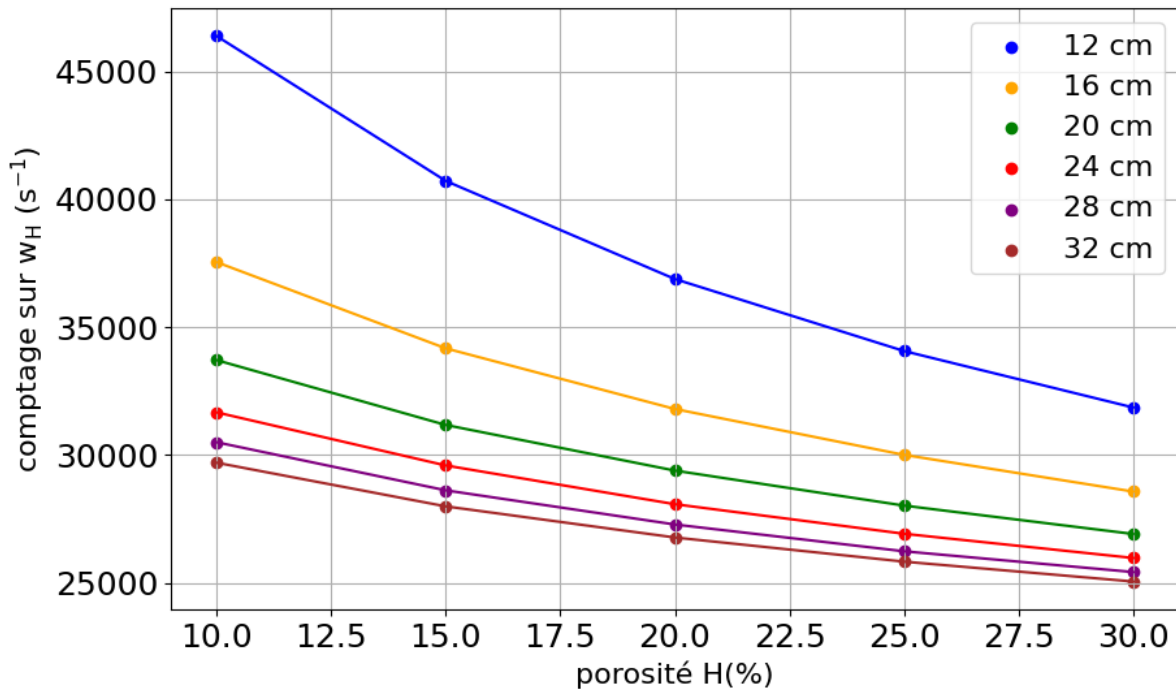


FIGURE 2.12 – Effet du diamètre de tubage sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_H (pour une mesure de 1 s à une émission moyenne du générateur de $10^8 s^{-1}$).

L'effet du diamètre étant dissymétrique, nous ne considérerons que l'écart relatif maximum à 20 % de porosité hydrogène, entre la référence (20 cm) et le point le plus éloigné (ici pour un diamètre de 12 cm). L'écart relatif maximum est alors de 25 %, rapporté à la mesure de porosité, cet écart de comptage se traduit par une incertitude de lecture sur la porosité de 70 % (soit 6 % de porosité hydrogène lue au lieu de 20 % pour un diamètre de 12 cm). Il est donc crucial de prendre en compte le diamètre du forage, qui est normalement connu, pour interpréter la mesure de porosité.

- Effet sur la mesure de teneur en uranium

La figure 2.13 montre l'évolution des comptages sur la fenêtre w_{PFN} pour différents teneurs et différents diamètres de tubage à 20 % de porosité hydrogène. La réponse est toujours linéaire entre la quantité d'uranium simulée et le comptage obtenu. La pente, qui n'est autre que le coefficient d'étalonnage CE_{PFN} , dépend fortement du diamètre simulé : lorsque ce dernier augmente, la sensibilité de l'outil diminue.

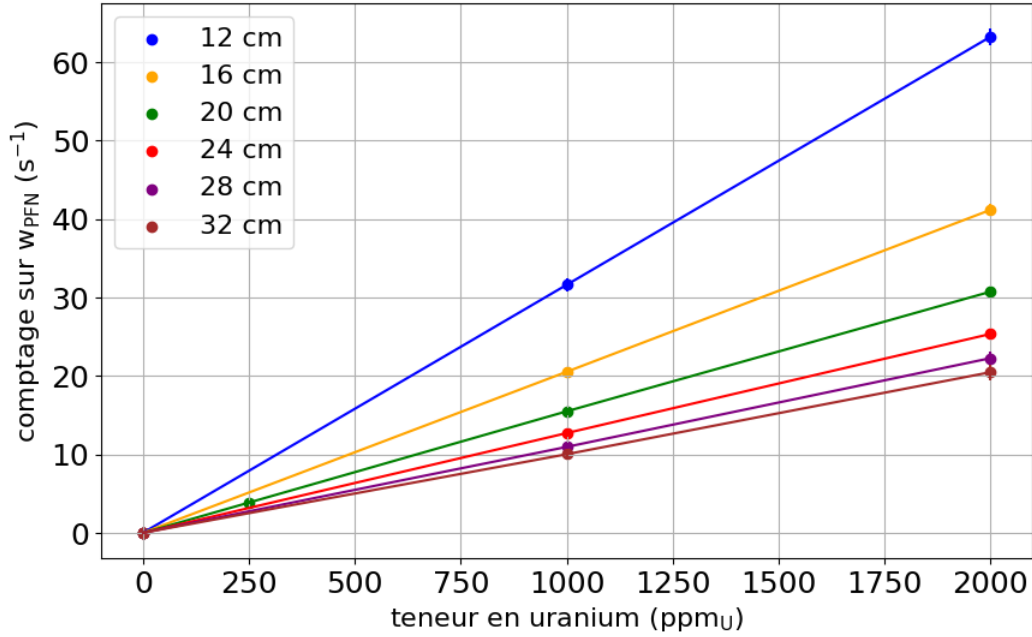


FIGURE 2.13 – Effet du diamètre de tubage sur le comptage dans la fenêtre d’intégration w_{PFN} (pour une mesure de 1 s à une émission moyenne du générateur de 10^8 s^{-1}).

Le coefficient d’étalonnage CE_{PFN} de la sonde avec un diamètre de tubage de 12 cm est ainsi égal à $3.18 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1} \cdot \text{ppm}_U^{-1}$ à 20 % de porosité hydrogène, contre seulement $1.56 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1} \cdot \text{ppm}_U^{-1}$ pour un tubage de 20 cm. L’interprétation tiendra compte du diamètre de tubage, qui est *a priori* connu, mais sans correction, une réduction non connue de 20 à 12 cm (ou pour un puits non tubé, un effondrement local dans ces proportions) induirait une surestimation de la teneur de l’ordre d’un facteur 2. Comme dans le cadre de la mesure de porosité hydrogène, l’effet n’est pas symétrique et tend à saturer quand le diamètre augmente. Si le comptage sur w_{PFN} est interprété en considérant un diamètre de 20 cm alors qu’il est en réalité de 32 cm, on surestime de 35 % la teneur (contre 103 % de sous-estimation si le diamètre est de 12 cm).

2.4.3 Effet du plaquage de la sonde

Lors de cette étude, la distance entre le tubage et la sonde (*standoff*) varie de 0 à 5 cm. Le cas à 0 cm correspond à la situation où l’outil est plaqué parfaitement contre le tubage (on néglige la lame de 0.1 mm implémentée pour les besoins de la simulation) et 5 cm où la sonde y est centrée. Le *standoff* agit fortement sur la quantité d’hydrogène présente au voisinage direct de la sonde. Une perspective d’étude similaire intéressante serait l’effet d’une cavité augmentant la distance entre la formation et la sonde, celle-ci restant plaquée contre le tubage, en cas d’effondrement local derrière ce dernier.

- Effet sur la mesure de porosité hydrogène

La figure 2.14 montre l’évolution des comptages sur w_H en fonction de la porosité hydrogène de la formation et de l’espacement entre la sonde et le tubage (à 1000 ppm_U). Comme attendu, la sensibilité de l’outil à l’hydrogène présent dans la matrice géologique est la plus importante lorsque l’outil est collé au tubage, la réponse tendant à saturer lorsque l’outil est entouré d’eau au milieu du puits.

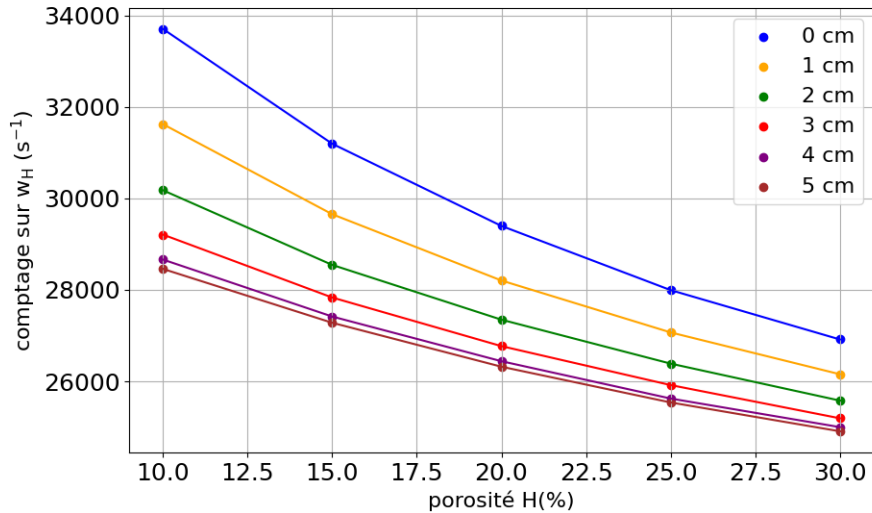


FIGURE 2.14 – Effet de l’espacement sur le comptage dans la fenêtre d’intégration w_H (pour une mesure de 1 s à une émission moyenne du générateur de 10^8 s^{-1}).

Avec 20 % de porosité hydrogène on observe un écart relatif maximum sur les comptages entre les espacements à 0 et 5 cm de 11 %. Rapporté à la mesure de porosité, cet écart de comptage se traduit par une incertitude de lecture sur la porosité de 74 % (soit 35 % de porosité hydrogène lue au lieu de 20 % pour un espacement de 5 cm). Le *standoff* (ou la présence d’une cavité) a donc un effet majeur sur l’interprétation de la mesure de porosité et il conviendra de l’estimer au mieux, que ce soit avec des moyens mécaniques pour plaquer la sonde, ou en étudiant les possibilités de détection d’une éventuelle lame d’eau ou d’une cavité.

- Effet sur la mesure de teneur en uranium

La figure 2.15 montre l’évolution des comptages sur la fenêtre w_{PFN} pour différentes teneurs et valeurs d’espacement, à 20 % de porosité hydrogène. La réponse est bien linéaire entre la quantité d’uranium simulée et le comptage obtenu mais la pente (c’est à dire le coefficient d’étalonnage CE_{PFN}) dépend très clairement de la valeur d’espacement. La sensibilité de l’outil diminue avec l’épaisseur de la lame d’eau entre la sonde et le tubage.

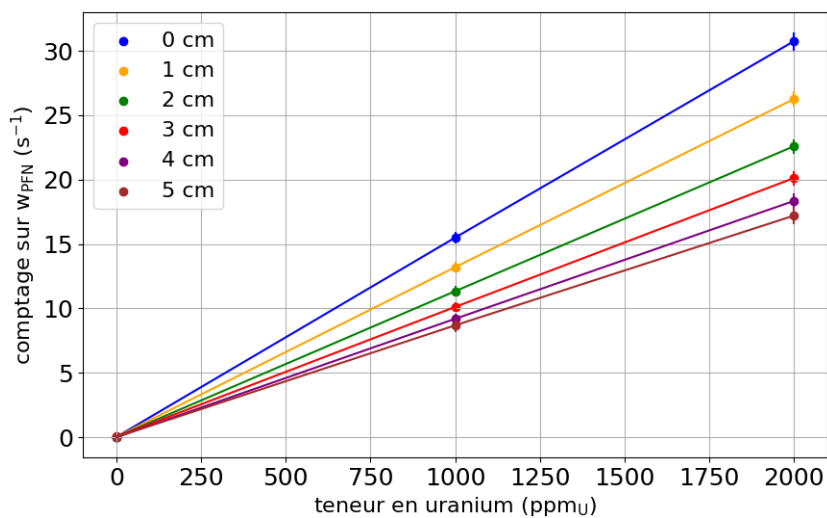


FIGURE 2.15 – Effet de l’espacement sur le comptage dans la fenêtre d’intégration w_{PFN} (pour une mesure de 1 s à une émission moyenne du générateur de 10^8 s^{-1}).

Le CE_{PFN} de la sonde passe de $1.56 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1} \cdot \text{ppm}_U^{-1}$ à $0.88 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1} \cdot \text{ppm}_U^{-1}$ entre un *standoff* de 0 et 5 cm, soit un écart relatif de 44 %. Comme pour la mesure de porosité, l'espacement (ou une cavité d'eau) a donc un impact très important sur l'interprétation de la mesure PFN pour estimer la teneur en uranium.

2.4.4 Effet de l'épaisseur d'un tubage

Différents tubages ont été étudiés pour des épaisseurs de 2, 4 et 6 mm avec du PVC ou un acier de type 316L, largement utilisé sur les sites de forage. En plus du fer (65 %) et du carbone (0.03 %) naturellement présents dans tous les aciers, ce dernier contient du chrome (17 %), du nickel (12 %), du molybdène (2.5 %), du manganèse (2 %), du silicium (1 %), du phosphore (0.045 %), du soufre (0.03 %) [70]. Du point de vue de la mesure neutronique, le polychlorure de vinyle (PVC), de formule $(C_2H_3Cl)_N$, est fortement hydrogéné et contient également du chlore qui présente une grande section efficace d'absorption des neutrons thermiques (voir tableau 2.1). Ce dernier montre que le fer présent à 65 % dans l'acier, avec une section efficace de capture radiative non négligeable (2.33 barn à 25 meV) et une densité de 8, est supposé être moins absorbant pour les neutrons thermiques que son homologue en PVC. Il faut néanmoins prendre en compte aussi les sections efficaces de diffusion des neutrons épithermiques pour ces différents éléments, pour des énergies allant de 1 eV à 1 keV, et ce pour bien comprendre les effets observés sur le signal w_H dans les paragraphes suivants.

TABLEAU 2.1 – Sections efficaces de capture radiative (n, γ) à 25 meV des éléments constitutifs des tubages (bibliothèque ENDF/B-VIII.0)

Élément*	Fraction atomique dans le matériau (%)	Section efficace (barn) de capture radiative à 25 meV	Matériau	Densité	Section efficace macroscopique (cm^{-1})**
H	50	3.35×10^{-1}	PVC	1.406	4.68×10^{-1}
C	33	3.86×10^{-3}			
Cl	17	33.5			
Fe	65	2.60	Acier 316L	8	2.624×10^{-1}
Cr	17	3.13			
Ni	12	4.12			
Mo	2.5	2.55			
Mn	2	13.4			
Si	1	1.66×10^{-1}			
P	0.045	1.70×10^{-1}			
C	0.03	3.86×10^{-3}			
S	0.03	5.17×10^{-1}			
H	66	3.35×10^{-1}			
O	33	1.72×10^{-4}			
Cl	0.3	33.5			
Na	0.3	5.31×10^{-1}			

* Isotopie naturelle représentée dans le tableau, la section efficace indiquée est une moyenne pondérée des sections efficaces microscopiques par la fraction naturelle des isotopes concernés.

** Moyenne pondérée des sections efficaces microscopiques des noyaux constitutifs de ces matériaux par leurs concentrations respectives (cm^{-3}) pour comparer les propriétés absorbantes des matériaux composés de plusieurs éléments (PVC, acier, eau de mer).

- Effet sur la mesure de porosité hydrogène d'un tubage PVC

La figure 2.16 montre l'évolution des comptages sur w_H en fonction de la porosité hydrogène de la formation et de l'épaisseur d'un tubage en PVC (à 1000 ppm_U).

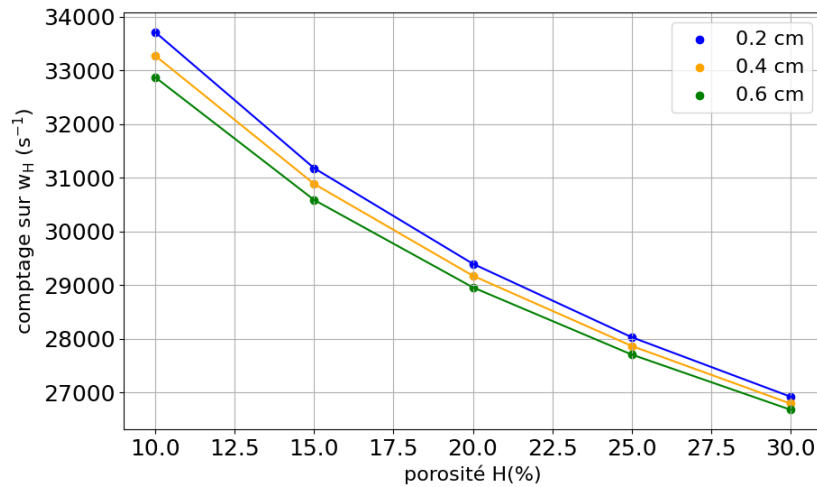


FIGURE 2.16 – Effet de l'épaisseur d'un tubage PVC sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_H (pour une mesure de 1 s à une émission moyenne du générateur de $10^8 s^{-1}$).

Avec 20 % de porosité hydrogène, on observe un écart relatif du comptage sur w_H entre les épaisseurs de tubage 0.2 et 0.6 cm de 1.5 %. Tout comme pour le diamètre, l'épaisseur du tubage sera prise en compte lors de l'interprétation, mais en cas d'erreur ou de méconnaissance sur son épaisseur réelle, l'incertitude relative sur la porosité de référence à 20 %, par exemple, ne serait alors que de 8 % (lecture de 21.6 % au lieu de 20 %).

- Effet sur la mesure de teneur en uranium d'un tubage PVC

La figure 2.17 montre l'évolution des comptages sur la fenêtre w_{PFN} pour différentes teneurs et différentes épaisseurs d'un tubage PVC à 20 % de porosité hydrogène. La réponse reste linéaire entre la quantité d'uranium simulée et le comptage obtenu mais la pente (coefficient CE_{PFN}) dépend légèrement de l'épaisseur de tubage, passant de 1.55×10^{-2} à $1.28 \times 10^{-2} s^{-1} \cdot ppm_U^{-1}$ entre 0.2 et 0.6 cm, soit un écart relatif de 17 % .

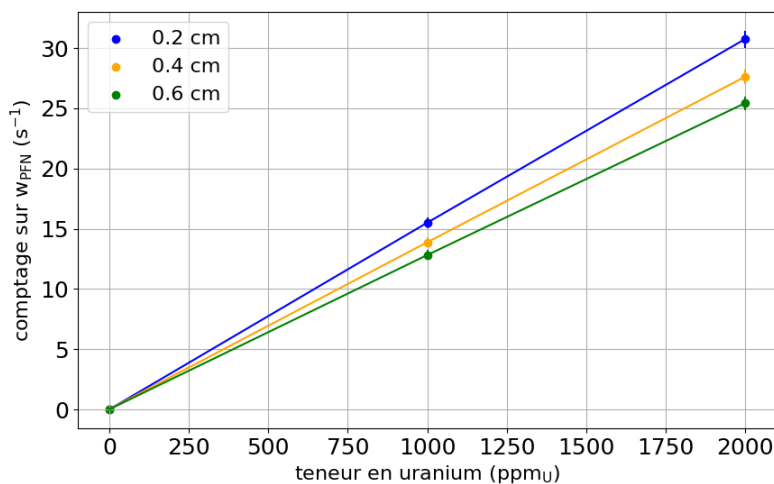


FIGURE 2.17 – Effet de l'épaisseur d'un tubage PVC sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_{PFN} (pour une mesure de 1 s à une émission moyenne du générateur de $10^8 s^{-1}$).

- Effet sur la mesure de porosité hydrogène d'un tubage acier

La figure 2.18 montre l'évolution des comptages sur w_H en fonction de la porosité hydrogène de la formation et de l'épaisseur du tubage, en acier 316L (à 1000 ppm_U). On remarque une augmentation des comptages de l'ordre de 3 % avec l'épaisseur du tubage acier, alors qu'on observait une légère diminution avec un tube PVC. Cela correspondrait à une incertitude relative de lecture sur la porosité de 17 % (avec une porosité de 20 % on lit 23.3 %) si on ne maîtrisait pas l'épaisseur d'acier. Une explication possible est que le volume d'ordinaire occupé par de l'hydrogène (eau du puits, ou hydrogène du PVC) est remplacé par des éléments métalliques (principalement du fer, du chrome et du nickel), peu thermalisants pour les neutrons mais avec des sections efficaces élevées de diffusion inélastique (de l'ordre du barn, pour les neutrons rapides) et élastique (supérieure à 10 barn pour les neutrons thermiques). Les neutrons rétro-diffusés par l'acier ajoutent donc un signal supplémentaire mesurable par le bloc de détection entouré de cadmium car ils perdent peu d'énergie, et ceux diffusés dans la formation ont aussi plus de chance d'être comptés en traversant le tube en acier (qui ne les ralentit quasiment pas) que celui de PVC. Toutefois, l'effet du tubage acier ou PVC est relativement faible et peut être corrigé *a priori*, mais si une section de tubage PVC est remplacée localement par de l'acier sur quelques mètres (ou l'inverse), il peut être important d'en tenir compte.

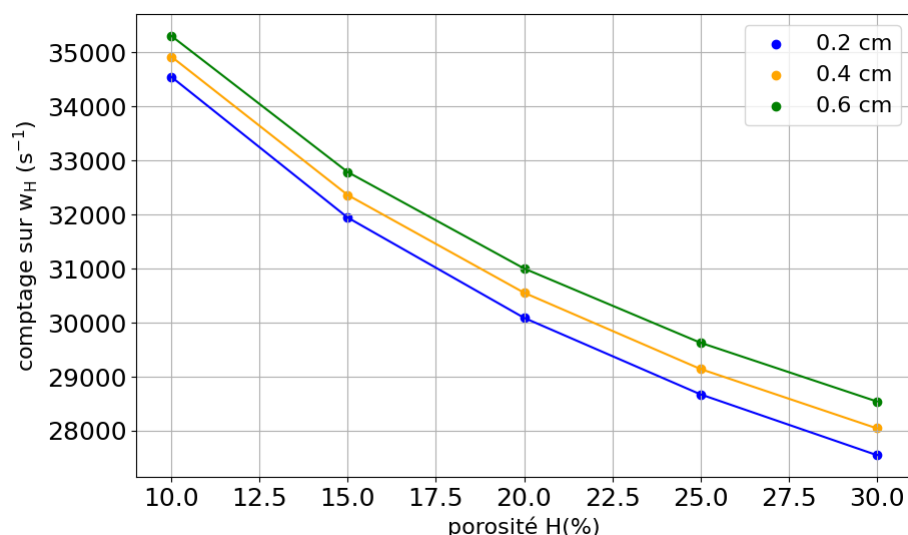


FIGURE 2.18 – Effet de l'épaisseur d'un tubage acier (316L) sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_H (pour une mesure de 1 s à une émission moyenne du générateur de 10^8 s⁻¹).

- Effet sur la mesure de teneur en uranium d'un tubage acier

La figure 2.19 montre l'évolution des comptages sur la fenêtre w_{PFN} pour différentes teneurs et différentes épaisseurs d'un tubage acier (316L) à 20 % de porosité hydrogène. La réponse est toujours linéaire entre la quantité d'uranium simulée et le comptage obtenu. La pente et donc le CE_{PFN} dépendent de l'épaisseur de tubage simulée. La sensibilité de l'outil diminue légèrement avec l'épaisseur du tubage, le coefficient d'étalonnage CE_{PFN} passant de 1.6×10^{-2} à 1.4×10^{-2} s⁻¹.ppm_U⁻¹ pour une épaisseur de 0.2 à 0.6 cm, soit un écart relatif maximum de 12 %. L'effet sur le comptage réalisé sur w_{PFN} est donc légèrement moins marqué, mais contrairement à la mesure de porosité, il va dans le même sens d'une diminution du signal que pour un tubage PVC (17 %). La section efficace macroscopique d'absorption du flux de neutrons thermiques interrogateurs par l'acier est 1.8 fois moins importante que celle du PVC, voir tableau 2.1. Cependant, le tube en acier, très peu modérateur, affecte moins l'efficacité de détection des PFN par le bloc épithermique sous cadmium que le tube en PVC.

L'incidence moindre du tubage acier sur le signal PFN, plaident en faveur du choix de ce type de tubage pour la sonde neutronique. De plus, en pratique, les épaisseurs de tubage en acier sont généralement moins grandes que pour les tubages PVC.

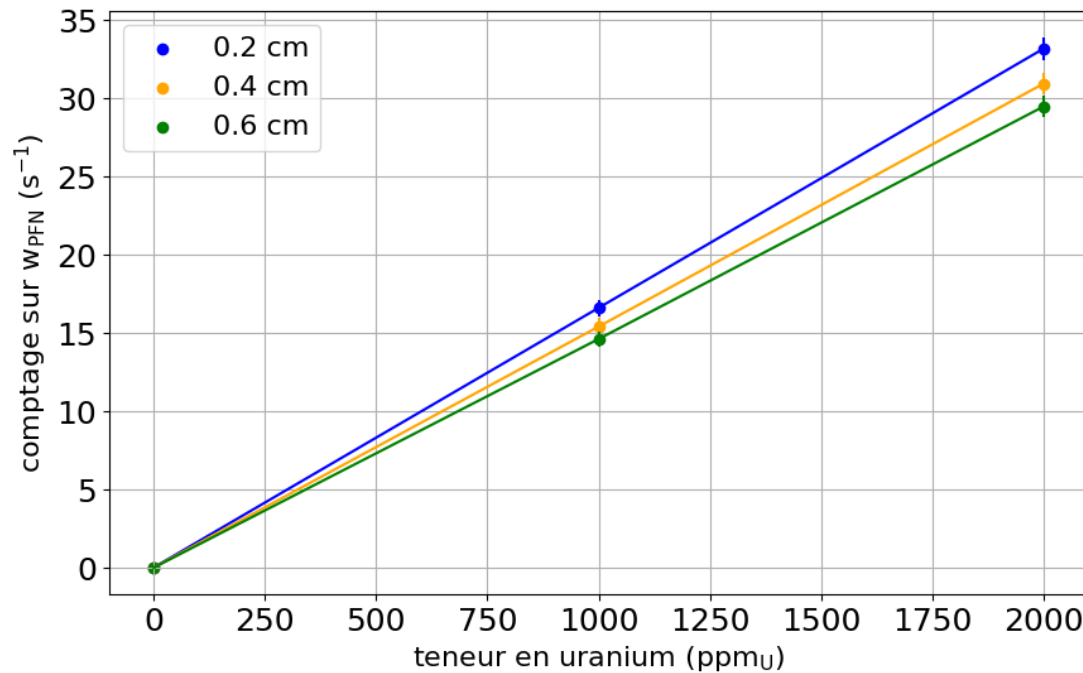


FIGURE 2.19 – Effet de l'épaisseur d'un tubage acier (316L) sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_{PFN} (pour une mesure de 1 s à une émission moyenne du générateur de 10^8 s^{-1}).

2.4.5 Effet de l'épaisseur d'une gangue de boue ou d'une lame d'eau contre la paroi du puits

Il est difficile d'estimer précisément l'épaisseur et la densité d'un *mudcake* (gangue de boue qui se forme sur la paroi dans un puits de forage) uniquement à l'aide de mesures nucléaires. L'échographie et la RMN (résonance magnétique nucléaire) [71] sont des techniques permettant d'accéder à ces informations directement dans un puits, mais nécessitent des diagraphies supplémentaires avec des sondes dédiées. Nous modélisons donc ici le *mudcake* comme une lame d'eau de densité 1.6, avec plusieurs épaisseurs de 0, 0.3 et 0.6 cm choisies avec ORANO pour cette étude. Par ailleurs, nous simulerons aussi un *mudcake* de masse volumique de 1 g.cm^{-3} correspondant au cas d'une lame d'eau dans l'espace entre le tube et la formation.

- Effet sur la mesure de porosité hydrogène d'un *mudcake* de densité 1.6

La figure 2.20 montre l'évolution des comptages sur w_H en fonction de la porosité hydrogène de la formation et de l'épaisseur du *mudcake*, avec une densité de 1.6 (à 1000 ppm_U). On constate que le comptage diminue avec l'épaisseur, en raison de la forte teneur en hydrogène du *mudcake*. Avec 20 % de porosité hydrogène dans la formation, on observe un écart relatif sur les comptages entre les épaisseurs de 0 et 0.3 cm de *mudcake* de l'ordre de 4.5 %. Rapporté à la mesure de porosité, cet écart de comptage se traduit par une erreur significative sur la porosité de 23.7 % (soit 15.5 % de porosité hydrogène lue au lieu de 20 % en l'absence de *mudcake*).

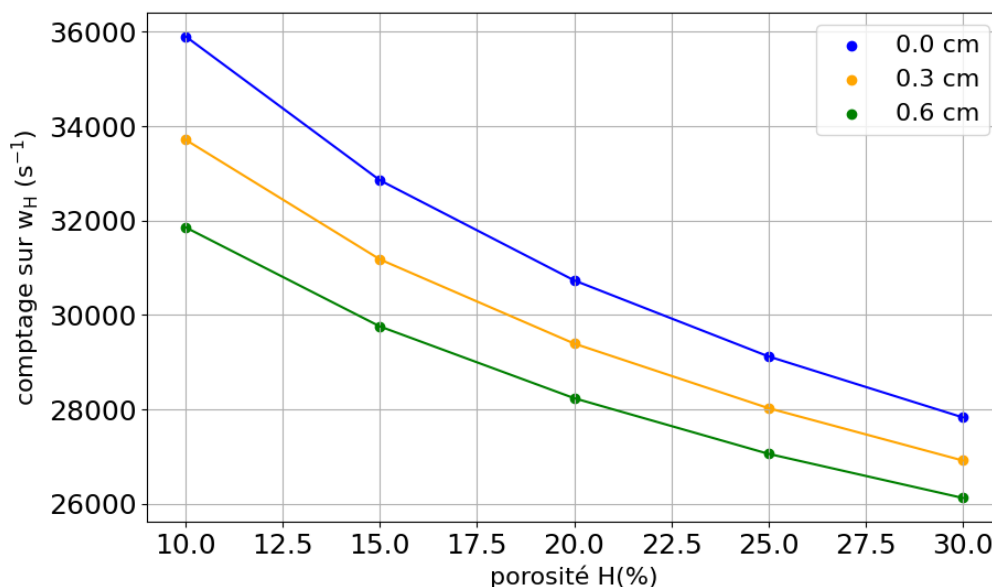


FIGURE 2.20 – Effet de l'épaisseur d'un *mudcake* de densité 1.6 sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_H (pour une mesure de 1 s à une émission moyenne du générateur de 10^8 s^{-1}).

- Effet sur la mesure de teneur en uranium d'un *mudcake* de densité 1.6

La figure 2.21 montre l'évolution des comptages effectués sur la fenêtre w_{PFN} pour différentes teneurs en uranium et épaisseurs de *mudcake* (d'une densité de 1.6) à 20 % de porosité hydrogène. La réponse est toujours linéaire entre la quantité d'uranium simulée et le comptage obtenu. La pente (c'est à dire le coefficient d'étalonnage CE_{PFN}) diminue légèrement avec l'épaisseur du tubage, passant d'une valeur de 1.65×10^{-2} à $1.55 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1} \cdot \text{ppm}_U^{-1}$ entre une épaisseur de 0 et 0.3 cm, soit un écart relatif de 9 %. L'influence du *mudcake* est donc plus faible sur la mesure PFN de la teneur en uranium que sur celle de la porosité.

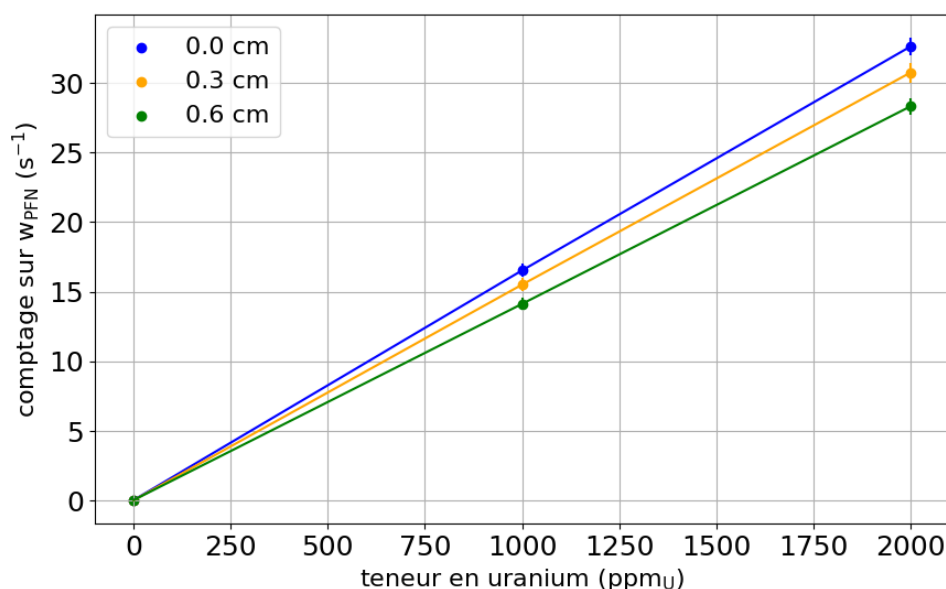


FIGURE 2.21 – Effet de l'épaisseur d'un *mudcake* de densité 1.6 sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_{PFN} (pour une mesure de 1 s à une émission moyenne du générateur de 10^8 s^{-1}).

- Effet sur la mesure de porosité hydrogène d'une lame d'eau interstitielle

La figure 2.22 montre l'évolution des comptages sur w_H en fonction de la porosité hydrogène de la formation et de l'épaisseur d'une lame d'eau entre le tubage et la formation, modélisée comme précédemment le *mudcake* mais avec une densité de 1 (à 1000 ppm_U). On constate là encore que le comptage diminue avec l'épaisseur d'eau et donc d'hydrogène ajoutée, de façon un peu moins marquée qu'avec un *mudcake* modélisé comme une lame d'eau de densité 1.6. Avec 20 % de porosité hydrogène on observe ainsi un écart du comptage sur w_H entre l'épaisseur de 0.3 cm et l'absence de lame d'eau de 2.5 % pour une lame d'eau de densité 1. Lire 20 % de porosité hydrogène à plus ou moins 2.5 % revient à une incertitude relative de 13 %.

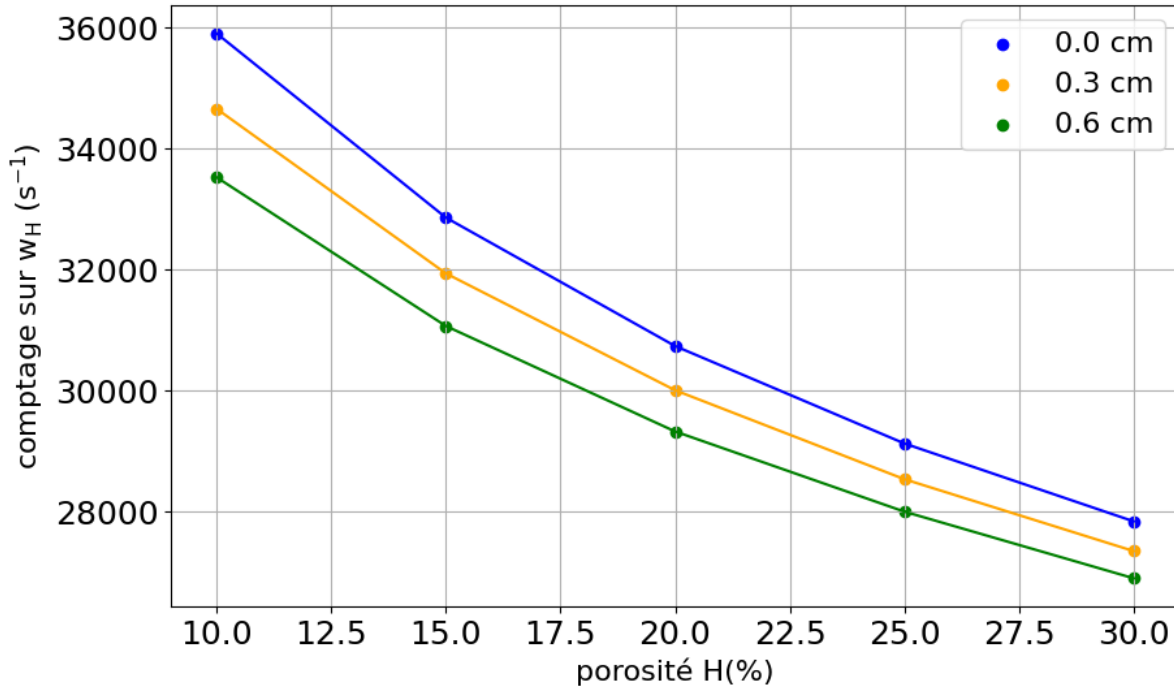


FIGURE 2.22 – Effet de l'épaisseur d'une lame d'eau interstitielle sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_H (pour une mesure de 1 s à une émission moyenne du générateur de $10^8 s^{-1}$).

- Effet sur la mesure de teneur en uranium d'une lame d'eau interstitielle

La figure 2.23 montre l'évolution des comptages sur la fenêtre w_{PFN} pour différentes teneurs en uranium et épaisseurs de lame d'eau à 20 % de porosité hydrogène. La pente (coefficient CE_{PFN}) dépend peu de la lame d'eau simulée dans cette gamme d'épaisseurs, elle passe de 1.63×10^{-2} à $1.59 \times 10^{-2} s^{-1}.ppm_U^{-1}$ entre 0 et 0.3 cm, soit un écart relatif maximum de 2.8 %. On note que les coefficients CE_{PFN} restent quasiment identiques entre les deux simulations réalisées sans *mudcake* (Figure 2.21) et ici sans lame d'eau (1.65×10^{-2} et $1.63 \times 10^{-2} s^{-1}.ppm_U^{-1}$, l'écart de 1 % étant dû à l'incertitude statistique de simulation).

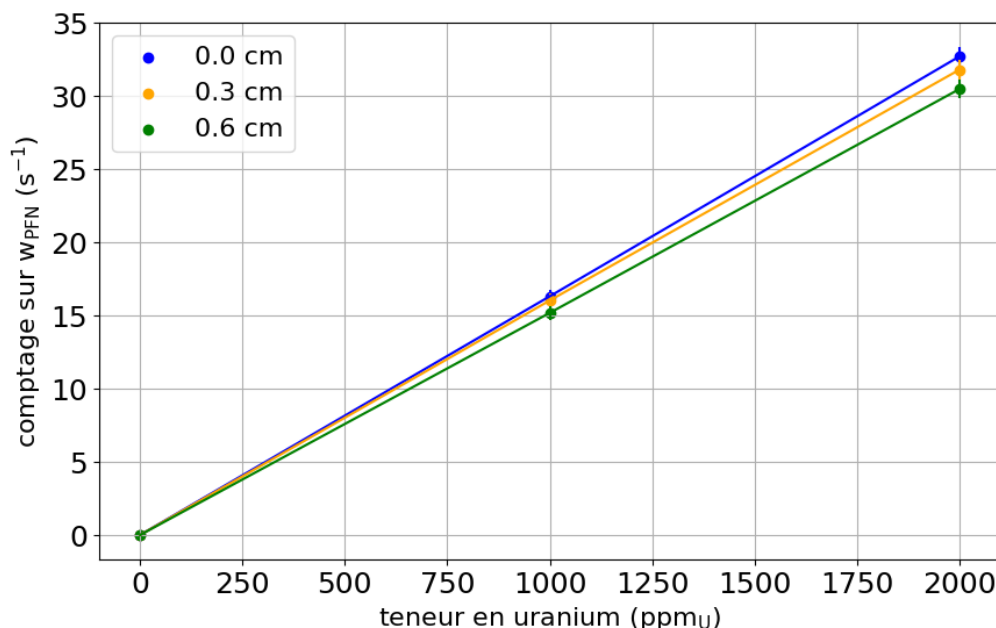


FIGURE 2.23 – Effet de l'épaisseur d'une lame d'eau interstitielle sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_{PFN} (pour une mesure de 1 s à une émission moyenne du générateur de 10^8 s^{-1}).

2.4.6 Effet de la salinité

Dans cette étude nous avons simulé la salinité de l'eau en fraction massique. Les cartes de matériaux sont calculées pour reproduire une masse de sel de mer (NaCl) par kg de saumure (mélange eau et sels). Le sel étant soluble dans l'eau, le volume est considéré comme constant dans le calcul, la densité de la saumure augmentant avec la salinité. La masse volumique de l'eau déminéralisée à 20°C est de 0.998 g.cm^{-3} et atteint la valeur maximale de 1.15 g.cm^{-3} pour un mélange contenant 200 g de sel par kg de saumure. L'évolution de la densité de la saumure entre ces bornes extrêmes de simulation est linéaire, conformément à ce qui est trouvé dans la littérature. Le cas de référence est celui de l'eau des océans, avec une salinité moyenne de 35 g.kg^{-1} .

Dans un premier temps, nous avons simulé de l'eau salée uniquement dans le puits de forage, avec la densité correspondante. L'eau contenue dans les pores a donc été modélisée avec une salinité de 0 g.kg^{-1} dans ce premier ensemble de simulation. Cela nous permet de dissocier par simulation les effets du chlore du puits et de la formation.

- Effet sur la mesure de porosité hydrogène de la salinité de l'eau dans le puits

La figure 2.24 montre l'évolution des comptages sur w_H en fonction de la porosité hydrogène de la formation et de la salinité de l'eau dans le forage (à 1000 ppm_U). Le comptage augmente avec la quantité de sel dans l'eau du forage, à l'instar de l'effet d'un tubage acier. Il semblerait, là aussi, que le remplacement d'une partie des noyaux d'hydrogène de l'eau par du sodium et du chlore diminue la thermalisation, tout en favorisant la diffusion des neutrons rapides, augmentant ainsi le signal rétrodiffusé. Néanmoins, jusqu'à des salinités de 35 g.kg^{-1} , l'effet reste très faible. L'écart relatif des comptages sur w_H entre 35 et 200 g.kg^{-1} à 20% de porosité est de 2.9% . L'évolution du comptage avec la porosité n'étant pas linéaire, cela correspond à une incertitude relative de lecture sur la porosité de 16% (on lit alors 16.82% au lieu de 20% à 200 g.kg^{-1}). L'utilisation d'un bloc de détection épithermique rend la mesure de porosité très peu sensible à la salinité alors que le chlore présent dans le sel perturbe fortement les mesures de porosité avec des détecteurs de neutrons thermiques [21].

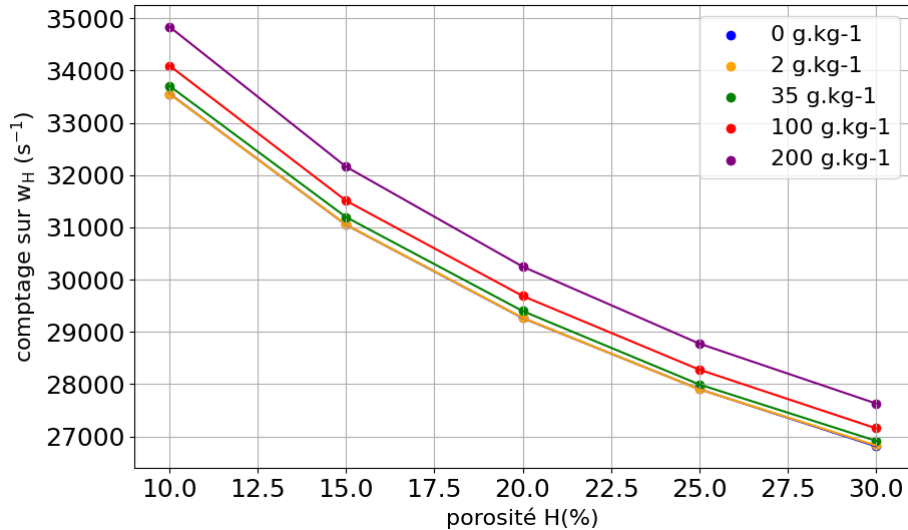


FIGURE 2.24 – Effet de la salinité de l'eau du puits sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_H (pour une mesure de 1 s à une émission moyenne du générateur de 10^8 s^{-1}). Les courbes bleues et oranges correspondant à 0 et 2 g.kg^{-1} sont confondues.

- Effet sur la mesure de teneur en uranium de la salinité de l'eau dans le puits

La figure 2.25 montre l'évolution des comptages sur la fenêtre w_{PFN} pour différentes teneurs et différentes salinités de l'eau du puits, à 20 % de porosité hydrogène. La réponse reste linéaire et la pente CE_{PFN} dépend peu de la salinité, passant de 1.5×10^{-2} à $1.4 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}.\text{ppm}_U^{-1}$ entre 35 et 200 g.kg^{-1} , soit un écart relatif maximum de 6.5 %. L'effet du chlore présent dans le puits uniquement n'est donc pas problématique pour la mesure de teneur en uranium. Ce résultat est cohérent avec ce que nous avons observé pour l'utilisation d'un tubage en PVC, les absorbants neutroniques ne jouent pas un grand rôle lorsqu'ils sont confinés au puits.

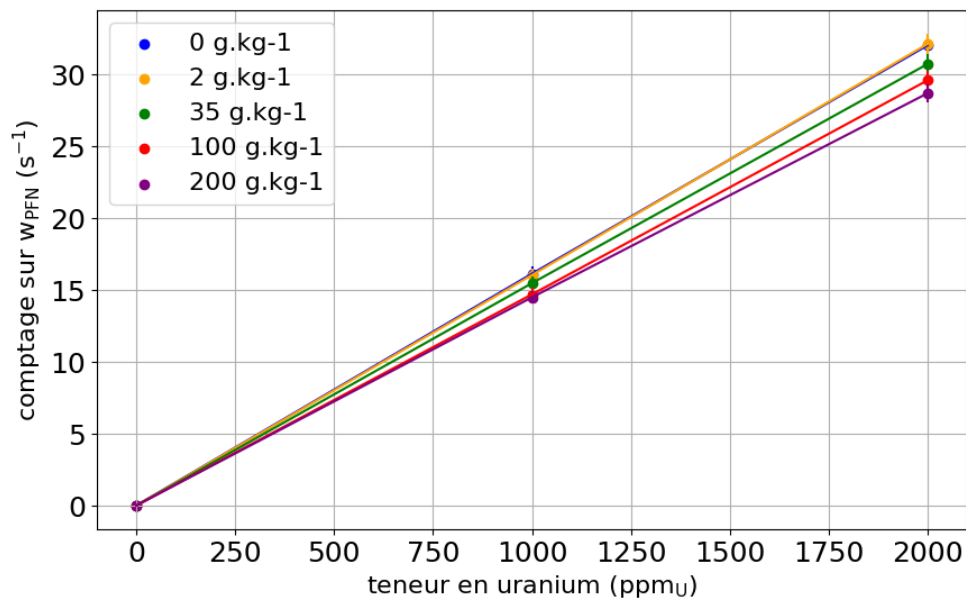


FIGURE 2.25 – Effet de la salinité de l'eau du puits sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_{PFN} (pour une mesure de 1 s à une émission moyenne du générateur de 10^8 s^{-1}). Les courbes bleues et oranges correspondant à 0 et 2 g.kg^{-1} sont confondues.

- Effet sur la mesure de porosité hydrogène de la salinité de l'eau dans le puits et la formation

Dans cette partie de l'étude paramétrique, nous avons simulé de l'eau salée à la fois dans le puits et les pores de la formation. Si cette dernière est perméable, ce qui est le cas des roches sédimentaires uranifères qui nous intéressent mais pas forcément des strates argileuses qui les entourent, l'eau circule librement entre le puits et la roche. Les salinités ont donc été simulées de façon homogène entre le puits et les pores.

La figure 2.26 montre l'évolution des comptages sur w_H en fonction de la porosité hydrogène de la formation et de la salinité de l'eau (à 1000 ppm_U). Nous avons laissé les valeurs de la section précédente afin de comparer les contributions de la salinité du puits seul et de la formation.

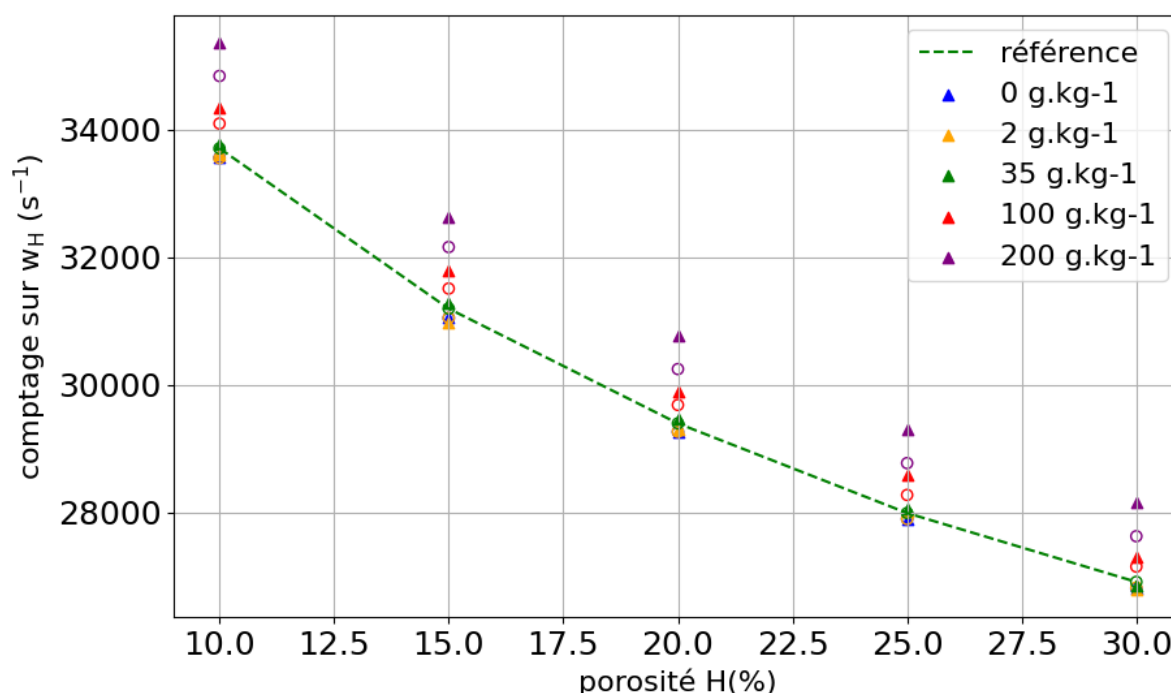


FIGURE 2.26 – Effet de la salinité de l'eau dans le puits et les pores sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_H (pour une mesure de 1 s à une émission moyenne du générateur de $10^8 s^{-1}$). Les marqueurs ronds représentent les valeurs de la figure 2.25, où seule l'eau du puits était de salinité croissante, pour comparaison. Les marqueurs triangles représentent les simulations où le sel est aussi présent dans l'eau des pores. Les simulations de référence sont représentées en pointillés verts.

Nous pouvons voir sur la figure 2.26 que le comptage augmente avec la quantité de sel dans l'eau des pores, l'effet précédemment observé avec le sel du puits est amplifié. Le remplacement d'une partie des noyaux d'hydrogène de l'eau par du sodium et du chlore diminue donc la porosité hydrogène mesurée. L'écart relatif des comptages sur w_H entre 35 et 200 g.kg⁻¹ à 20 % de porosité est de 4.4 %, soit 1.5 fois l'effet de la salinité du puits seul. L'incertitude relative de lecture sur la porosité correspondante est alors de 19 % (on lit alors 16.21 % au lieu de 20 % à 200 g.kg⁻¹).

- Effet sur la mesure de teneur en uranium de la salinité de l'eau dans le puits et la formation

La figure 2.27 montre l'évolution des comptages sur la fenêtre w_{PFN} pour différentes teneurs en uranium et différentes salinités de l'eau, à 20 % de porosité hydrogène. Là aussi nous avons laissé les valeurs de la section précédente afin de comparer les contributions de la salinité du puits seul et de la formation.

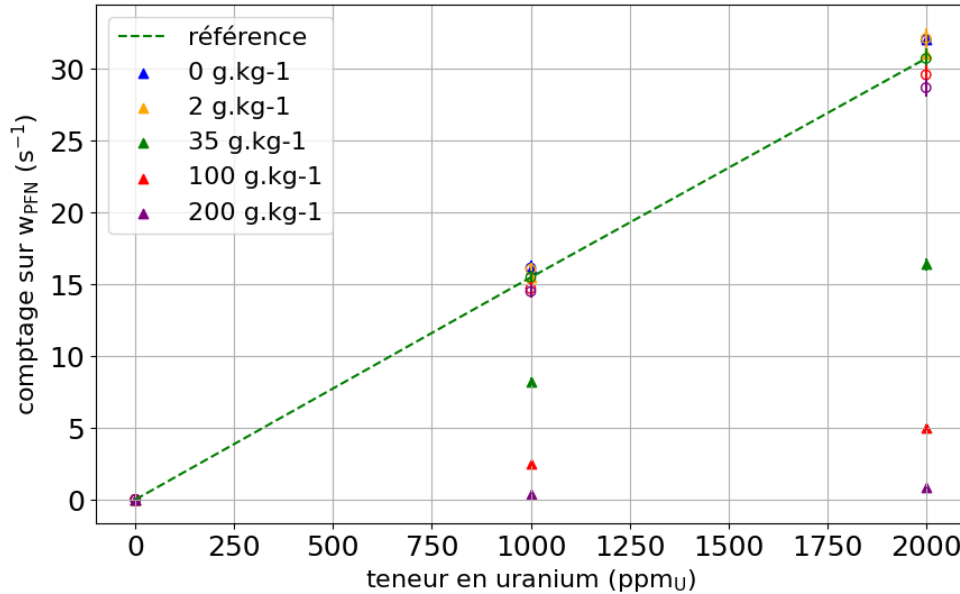


FIGURE 2.27 – Effet de la salinité de l'eau dans le puits et les pores sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_{PFN} (pour une mesure de 1 s à une émission moyenne du générateur de 10^8 s^{-1}). Les marqueurs ronds représentent les valeurs de la figure 2.25, où seule l'eau du puits était de salinité croissante, pour comparaison. Les marqueurs triangles représentent les simulations où le sel est aussi présent dans l'eau des pores. Les simulations de référence sont représentées en pointillés verts.

La réponse reste linéaire mais la pente CE_{PFN} dépend très fortement de la salinité de l'eau dans les pores de la formation, passant de 8.2×10^{-3} à $3.7 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}.\text{ppm}_U^{-1}$ entre 35 et 200 g.kg^{-1} , soit un écart relatif maximum de 95 %. Le chlore présent dans la formation absorbe énormément les neutrons thermiques qui sont à l'origine des fissions de l'uranium 235 et donc du signal PFN. Cela nous indique que notre méthode n'est pas adaptée pour mesurer de l'uranium dans des matrices avec des concentrations importantes d'absorbants neutroniques.

Remarque : comme mentionné en partie 2.2.2, l'eau est douce ($< 1 \text{ g.kg}^{-1}$) dans les sables du Kazakhstan, et par ailleurs même avec de l'eau salée des salinités supérieures à 35 g.kg^{-1} sont très peu courantes en pratique, mais cette étude permet de comprendre l'effet du chlore et d'établir des limites à la méthode pour d'éventuelles utilisation dans des milieux riches en absorbants neutroniques (bore, lithium, chlore, gadolinium. .).

Si on se concentre sur une gamme de salinité réaliste, entre 0 et 35 g.kg^{-1} , celle-ci affecte le coefficient d'étalonnage CE_{PFN} de façon quasi linéaire à hauteur de $2.5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}.\text{ppm}_U^{-1}$ par unité de salinité supplémentaire (1 g.kg^{-1}). On rappelle que le coefficient d'étalonnage de référence vaut $1.54 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}.\text{ppm}_U^{-1}$. Cela représente donc 1.6 % de sous-estimation de la teneur en uranium par unité supplémentaire de salinité (1 g.kg^{-1}) non maîtrisée. Dans une eau douce, cela équivaut à une incertitude sur la lecture égale ou inférieure à 1.6 %.

2.4.7 Effet de la lithologie

Dans cette dernière partie de l'étude paramétrique, nous avons simulé quelques points en remplaçant la matrice solide de silice (SiO_2 de densité 2.65) usuelle par de la calcite pure (CaCO_3 de densité 2.71). En réalité, les roches sédimentaires d'intérêt peuvent être modélisées comme des combinaisons linéaires de silice et de calcite (ex : 90 % SiO_2 + 10 % CaCO_3), la présente étude sert à observer les effets d'une autre matrice, et de vérifier le domaine de validité de la méthode.

- Effet sur la mesure de porosité hydrogène d'une matrice CaCO_3

La figure 2.28 montre l'évolution des comptages sur w_H en fonction de la porosité hydrogène de la formation pour une matrice de CaCO_3 en la comparant aux valeurs obtenues dans une matrice de SiO_2 (à 1000 ppm_U). Le comptage est légèrement inférieur, avec par exemple un écart relatif de 2.2 % à 20 % de porosité, ce qui correspond à une incertitude relative sur cette dernière de 13 % (par exemple, pour le point bleu à 20 %, avec un comptage de 28 700 s⁻¹ on lit une porosité hydrogène de 22.5 %).

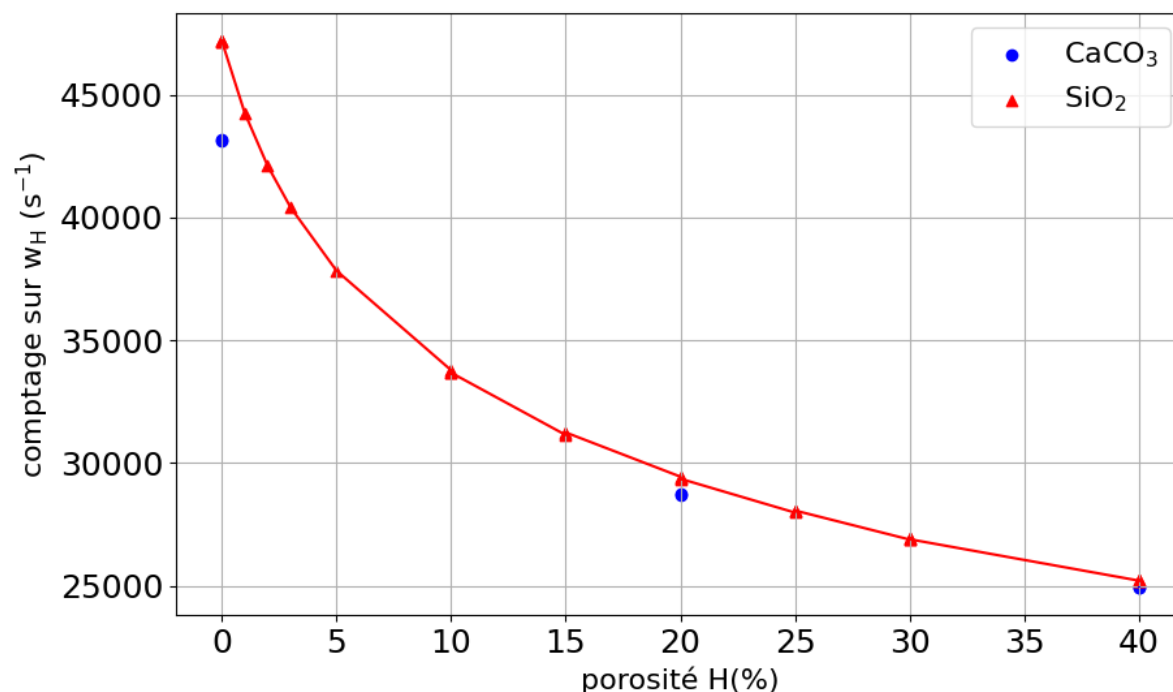


FIGURE 2.28 – Effet d'une matrice CaCO_3 sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_H (pour une mesure de 1 s à une émission moyenne du générateur de 10^8 s⁻¹).

- Effet sur la mesure de teneur en uranium d'une matrice CaCO_3

La figure 2.29 montre l'évolution des comptages sur la fenêtre w_{PFN} pour une matrice de CaCO_3 en la comparant aux valeurs obtenues dans une matrice de SiO_2 et pour différentes valeurs de porosité hydrogène. La réponse reste linéaire entre la quantité d'uranium simulée et le comptage mais les coefficients de sensibilité CE_{PFN} sont sensiblement affectés, passant par exemple de 8.0×10^{-3} à 1.5×10^{-2} s⁻¹.ppm_U⁻¹ entre une matrice de CaCO_3 à celle de SiO_2 , dans le cas d'une porosité hydrogène de 20 %. Cet écart relatif de 45 % monte même à 57 % pour des matrices sèches (porosité hydrogène de 0 %) mais diminue quand la porosité hydrogène augmente, avec 35 % d'écart relatif lorsque cette dernière est de 40 %.

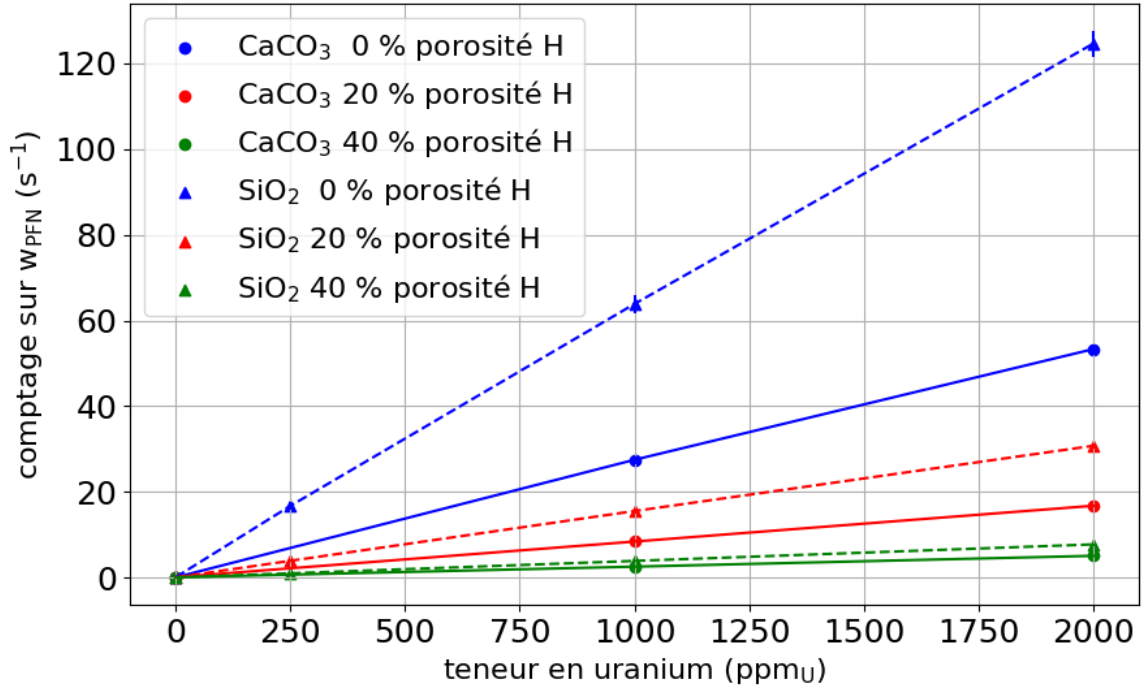


FIGURE 2.29 – Effet d’une matrice CaCO_3 sur le comptage dans la fenêtre d’intégration w_{PFN} (pour une mesure de 1 s à une émission moyenne du générateur de 10^8 s^{-1}).

Les différences observées sur la figure 2.29 peuvent s’expliquer par les différence de sections efficaces macroscopiques de capture radiative et de diffusion inélastique entre la silice et la calcite. Le tableau 2.2 permet d’effectuer la comparaison de ces dernières pour des neutrons incidents avec les énergies respectives de 14 MeV, 1 eV et 25 meV.

TABEAU 2.2 – Sections efficaces macroscopiques* de capture radiative (n,γ) et totales (n,tot) à 25 meV, 1 eV et 14 MeV des matrices de Silice et de Calcite (bibliothèque ENDF/B-VIII.0).

Énergie	25 meV		1 eV		14 MeV	
	(n, γ)	(n,tot)	(n, γ)	(n,tot)	(n, γ)	(n,tot)
unité	cm^{-1}	cm^{-1}	cm^{-1}	cm^{-1}	cm^{-1}	cm^{-1}
SiO_2 ($\rho=2.65$)	4.41×10^{-3}	2.26×10^{-1}	6.99×10^{-4}	2.56×10^{-1}	7.62×10^{-6}	2.50×10^{-1}
CaCO_3 ($\rho=2.71$)	7.26×10^{-3}	3.23×10^{-1}	1.15×10^{-3}	3.08×10^{-1}	1.28×10^{-5}	2.89×10^{-1}

* Moyenne pondérée des sections efficaces microscopiques des noyaux constitutifs de ces matériaux par leurs concentrations respectives (cm^{-3}) pour comparer les propriétés absorbantes et diffusantes des matrices géologiques.

L’effet de la matrice géologique est beaucoup plus marqué sur la mesure de teneur en uranium que sur celle de porosité hydrogène. En cas de changement de strate lithologique dans un puits, des changements de comptage brutaux pourront être observés. Si on ne dispose pas d’une information complémentaire, apportée par exemple par un détecteur sensible aux photons γ issus de l’activation neutronique, il y a un risque d’interpréter cette diminution de comptage comme une baisse significative de la teneur en uranium.

- Effet sur la mesure de porosité hydrogène de la présence de gadolinium dans la formation

Il faut également considérer la potentielle présence d'absorbants neutroniques (B, Li, Cl, Gd, ...) dans la formation qui risquent d'atténuer eux-aussi significativement le signal PFN. Nous avons lancé deux simulations en ajoutant du gadolinium (qui présente une section efficace d'absorption neutronique encore plus grande que celles du bore et du cadmium) dans la formation avec les teneurs moyennes maximales mesurées dans les mines ISR d'Orano Mining, respectivement 5 et 50 ppm.

La figure 2.30 compare les comptages obtenus en intégrant sur w_H en fonction de la porosité hydrogène de la formation pour la matrice de SiO_2 de référence avec les deux simulations contenant du gadolinium évoquées au paragraphe précédent. On constate que la présence de cet absorbant neutronique n'affecte pas les neutrons épithermiques comptés pour l'évaluation de la porosité hydrogène.

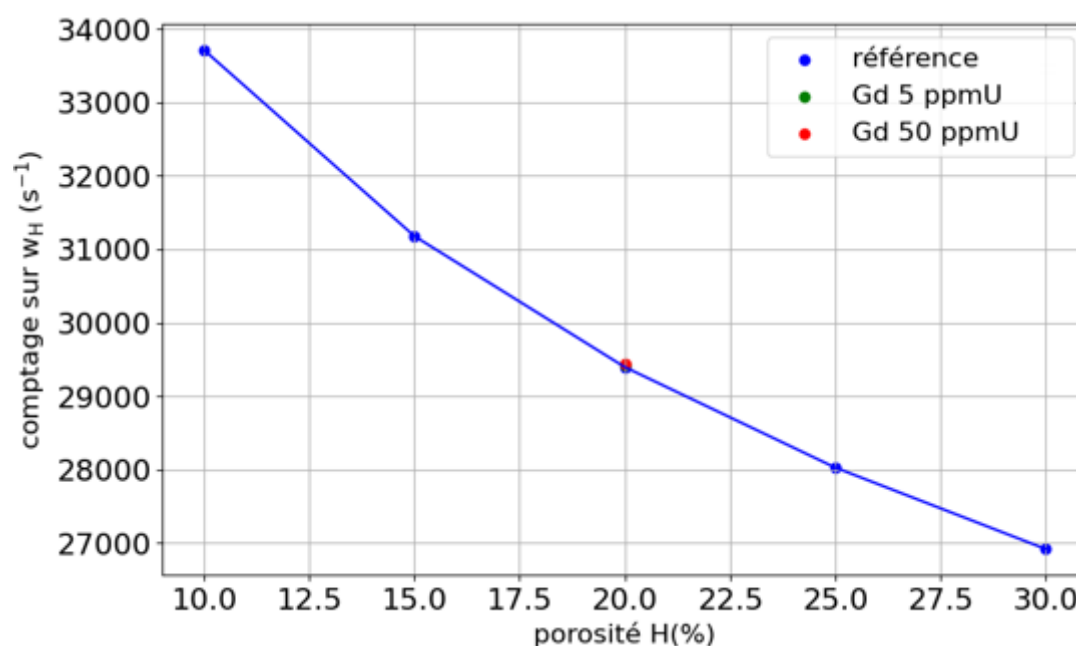


FIGURE 2.30 – Effet du gadolinium sur le comptage dans la fenêtre d'intégration w_H (pour une mesure de 1 s à une émission moyenne du générateur de $10^8 s^{-1}$).

- Effet sur la mesure de teneur en uranium de la présence de gadolinium dans la formation

La figure 2.31 représente les comptages obtenus en intégrant sur w_{PFN} en fonction de la teneur en uranium de la formation pour la matrice de SiO_2 de référence avec une porosité hydrogène de 20 %. Les points verts et rouges correspondent aux simulations contenant respectivement 5 et 50 ppm de gadolinium. Quelques ppm de cet absorbant neutronique suffisent à atténuer significativement le signal mesuré. Ce dernier est réduit de 93 % dans le cas extrême où la matrice contiendrait 50 ppm de gadolinium (ou équivalent).

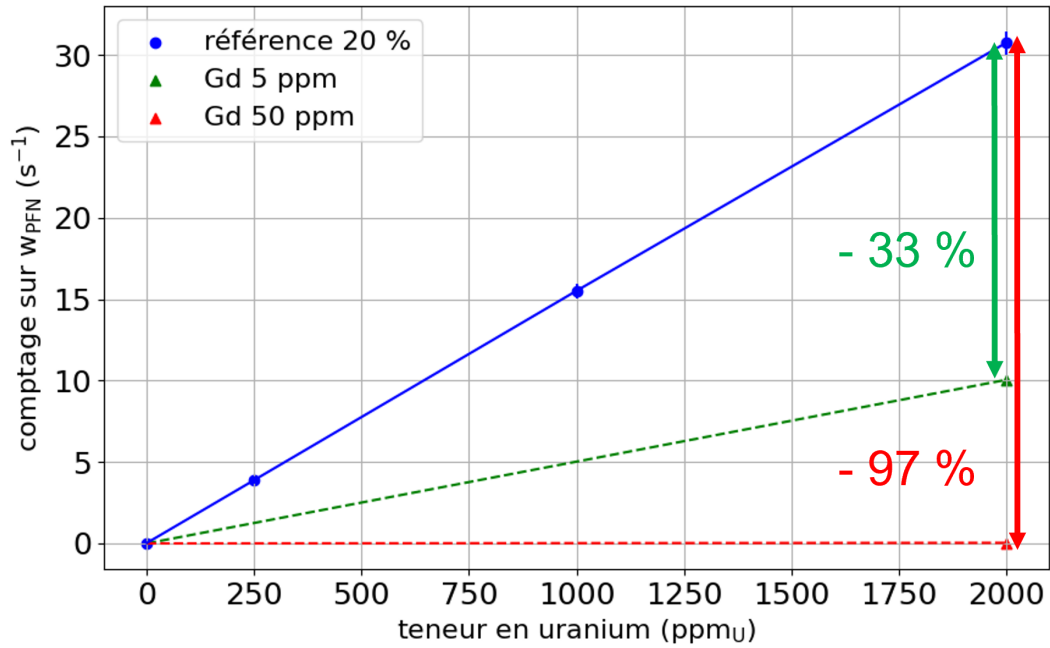


FIGURE 2.31 – Effet du gadolinium sur le comptage dans la fenêtre d’intégration w_{PFN} (pour une mesure de 1 s à une émission moyenne du générateur de 10^8 s^{-1}).

La figure 2.32 montre les chronogrammes neutroniques complets obtenus par simulation en présence de 5 et 50 ppm de gadolinium avec 10 000 ppm_U d’uranium dans la formation. La simulation en absence d’absorbant neutronique est représentée en bleue. Nous constatons que dans la première partie du chronogramme, entre 0 et 450 μs après le début du tir, les trois courbes se superposent. En revanche, la pente de décroissance du signal augmente significativement avec la teneur en gadolinium. Si nous avons suffisamment d’uranium dans la formation, ou si le temps d’acquisition le permet, il serait alors possible de corriger la mesure de teneur en uranium de la présence d’absorbants neutroniques. La pente de décroissance du signal PFN subit les effets de la porosité hydrogène, mais aussi des absorbants neutroniques. Il est possible de déterminer la contribution de l’hydrogène en utilisant la mesure de la porosité avec la première partie du chronogramme.

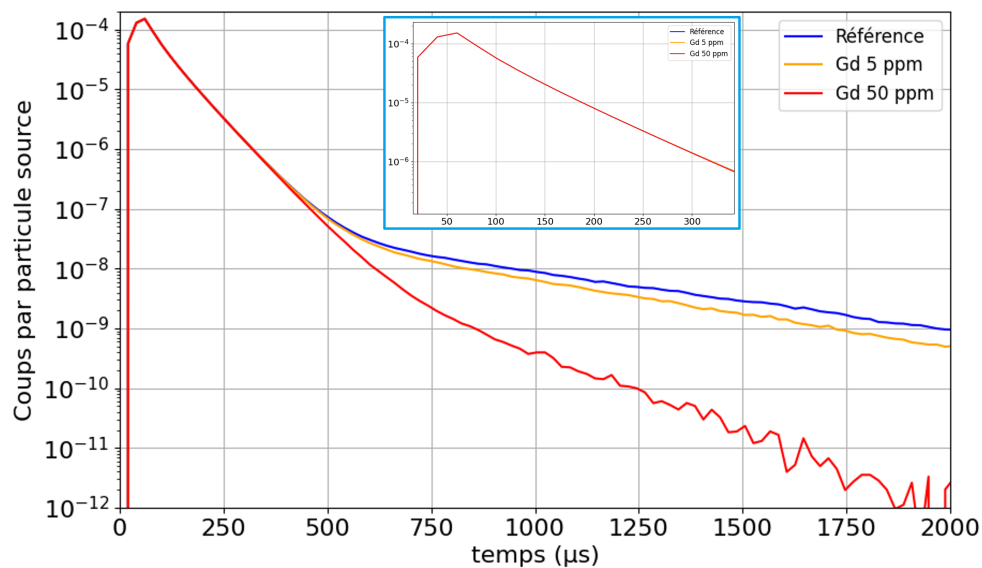


FIGURE 2.32 – Effet du gadolinium sur un chronogramme neutronique.

2.4.8 Synthèse de l'influence des paramètres étudiés

Il est possible de classer les paramètres étudiés précédemment en deux catégories, avec tout d'abord les grandeurs connues (sauf information manquante, imprécise ou erronée), comme le diamètre, le matériau et l'épaisseur du tubage. Il est alors possible de corriger l'effet de chacun de ces paramètres sur les mesures à l'aide de tables de coefficients de correction, ou de méthodes d'ajustement plus avancées qui, comme celles évoquées ci-dessus, sortent du cadre de la présente thèse. La seconde catégorie est celle de paramètres comme l'épaisseur et la densité du *mudcake*, qui peuvent être mesurés par des techniques complémentaires mais qui sont généralement mal connus. Il est possible dans certains cas de figure d'avoir un ordre de grandeur des valeurs de ces paramètres, mais rarement de connaître leur évolution sur l'entièreté du puits de forage. On peut alors se baser sur les valeurs enveloppes de l'étude paramétrique pour estimer une incertitude associée à cette méconnaissance.

TABLEAU 2.3 – Récapitulatif des paramètres d'influence sur la porosité hydrogène et sur la teneur en uranium mesurées, avec les écarts relatifs sur les grandeurs recherchées pour les valeurs extrêmes étudiées (pour estimer ces ordres de grandeur, on s'est placé à la porosité de référence de 20 %).

Paramètre	Catégorie	Bornes simulées Référence	Unité	Écart relatif maximum(%)	
				Porosité hydrogène	Teneur en uranium
Diamètre de tubage	Paramètre connu	12 - 20 - 32	cm	70	103
Distance sonde-paroi (<i>standoff</i>)	Paramètre connu	0 - 5	cm	74	44
Épaisseur de tubage PVC	Paramètre connu	0.2 - 0.4 - 0.6	cm	8	17
Épaisseur de tubage acier	Paramètre connu	0.2 - 0.4 - 0.6	cm	17	12
Épaisseur de la gangue de boue <i>mudcake</i>	Incertain	0 - 0.3 - 0.6	cm	24	9
Épaisseur de la lame d'eau	Incertain	0 - 0.3 - 0.6	cm	13	3
Salinité dans le puits	Incertain	0 - 35 - 200	g.kg ⁻¹	3	7
Salinité dans le puits et les pores	Incertain	0 - 35*	g.kg ⁻¹	0.2	46
Effet de la lithologie	Incertain	CaCO ₃ - SiO₂	Sans unité	3	45
Effet du gadolinium	Incertain	0 - 50	ppm	0.02	97

* Les valeurs de 100 et 200 g.kg⁻¹ pour la salinité de l'eau des pores sont irréalistes, afin que ce tableau n'induisse pas de conclusion erronée nous avons fait le choix de restreindre les résultats de cette étude au domaine 0 - 35 g.kg⁻¹

Le tableau 2.3 regroupe les paramètres et leur influence sur le signal mesuré dans les fenêtres w_H et w_{PFN} associées respectivement aux mesures de porosité hydrogène et de teneur en uranium. Les valeurs limites simulées ne sont pas nécessairement représentatives des fluctuations pouvant être rencontrées au sein d'un forage donné et donc ces écarts relatifs maximums pourront être recalculés de façon plus réaliste pour une famille de puits spécifique et avec la géométrie finale de la sonde industrielle. On constate globalement des effets légèrement plus importants sur w_{PFN} que sur w_H et en particulier une influence nettement plus marquée de la lithologie sur la mesure de la teneur en uranium que sur celle de porosité hydrogène. On peut rappeler aussi que certains paramètres qui augmentent le signal sur w_H , comme la présence d'un tubage acier, peuvent à l'inverse atténuer le signal sur w_{PFN} .

Une étude complémentaire concernant le cas particulier où le volume des pores est partiellement rempli d'air (formations non saturées en eau) est présentée en annexe E. Ce cas particulier peut être représentatif des premiers mètres du forage et dans la zone d'affleurement de nappes d'eaux souterraines. Cette annexe souligne la différence entre la porosité volumique (fraction de volume occupée par les pores) et la porosité hydrogène (fraction de volume occupée par l'eau) que l'on mesure, quand les pores ne sont pas saturés d'eau. Ceci qui peut s'avérer d'une grande importance pour le procédé ISR (*In Situ Recovery*) dans lequel la porosité volumique est un paramètre d'exploitation essentiel, car on injecte et on collecte des fluides dans la formation. On ne peut donc évaluer la porosité totale de la formation avec la mesure de porosité hydrogène que dans un environnement saturé à 100 % en eau.

Remarque : Dans le domaine pétrolier, il existe de nombreuses poches de gaz, pleines d'hydrocarbures et donc d'hydrogène. Cette problématique est extrêmement rare dans le cadre des gisements d'uranium du Kazakhstan.

2.4.9 Estimation des incertitudes de mesure

L'étude paramétrique précédente a montré les évolutions des comptages opérés sur w_H et w_{PFN} en fonction de différents paramètres, connus ou non, via la simulation de 278 géométries différentes. Nous devons prédire les deux grandeurs d'intérêt (la porosité hydrogène Φ_H et la concentration massique en uranium C_{mU} en fonction des deux observables mesurées, les taux de comptages S_{w_H} et $S_{w_{PFN}}$.

- Lecture de Φ_H

En inversant l'équation 2.2, nous pouvons tout d'abord estimer la porosité hydrogène Φ_H à partir du comptage S_{w_H} mesuré :

$$\Phi_H(S_{w_H}) = \frac{a}{S_{w_H} - b} - \Phi_0 \quad (2.5)$$

Les valeurs $\Phi_0 = -9.96$ %, $a = 2.62 \times 10^5$ % \cdot s $^{-1}$ et $b = 2.05 \times 10^4$ s $^{-1}$ avaient été calculées pour une géométrie de référence correspondant à un puits tubé en PVC de 20 cm de diamètre et d'épaisseur 2 mm, avec un espace intra annulaire de 1 mm et un *mudcake* de 3 mm modélisé comme de l'eau de densité 1.6.

Dans un premier temps, si on n'utilise pas les informations connues *a priori* comme le diamètre et l'épaisseur du tubage, la figure 2.33 compare les valeurs de Φ_H obtenues avec cette formule 2.5 et les 278 valeurs de S_{w_H} simulées. L'objectif est d'étudier la possibilité d'estimer directement Φ_H sans correction des effets des paramètres maîtrisés. La figure 2.33 montre qu'il n'est pas envisageable d'utiliser la formule 2.5 établie pour le cas de référence en vue de mesurer la porosité hydrogène dans tout le domaine exploré par l'étude paramétrique.

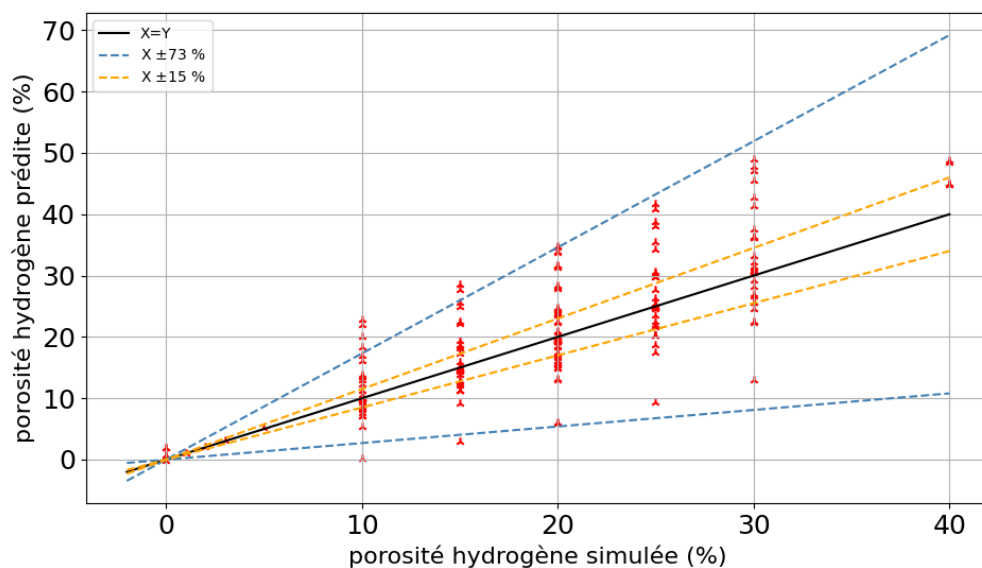


FIGURE 2.33 – Évaluation de la précision de la formule 2.5 pour déterminer la porosité hydrogène avec l'ensemble du jeu de données.

En ne représentant que les résultats de simulation d'un puits connu (diamètre de 20 cm, sonde plaquée, tubage PVC de 2 mm) proche du cas de référence, nous pouvons estimer l'incertitude résiduelle apportée par la méconnaissance des autres paramètres (épaisseurs du *mudcake*, salinité, lithologie), considérés comme non maîtrisés. Sur la figure 2.34 nous pouvons voir la dispersion bien plus faible que précédemment, avec les 86 simulations où le puits est maîtrisé et semblable au puits de référence. Du point de vue quantitatif, 65 % des valeurs présentent un écart inférieur à 7 % par rapport à la valeur attendue, et 95 % un écart inférieur à 25 %. Cela montre qu'en recalculant les trois coefficients de la formule 2.5 pour chaque type de tubage, et en considérant que la sonde est correctement plaquée (sans aspérité ou cavité sur les parois), il est possible d'avoir une estimation à 25 % près de la valeur de la porosité hydrogène dans un forage semblable.

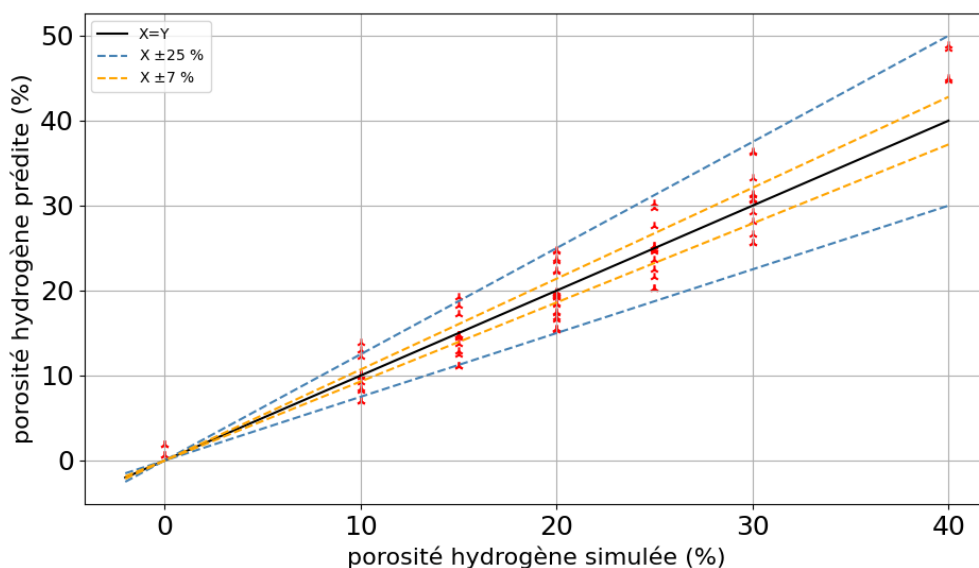


FIGURE 2.34 – Évaluation de la précision de la formule 2.5 pour déterminer la porosité hydrogène avec une fraction du jeu de données.

- Lecture de Cm_U

En ce qui concerne la mesure de l'uranium, on utilise la relation 2.3 pour déterminer Cm_U à partir du comptage dans la fenêtre w_{PFN} et du coefficient CE_{PFN} , qui dépend lui-même de Φ_H . Il est possible de combiner les relations 2.3 et 2.4, ou directement d'ajuster la fonction suivante des comptages $S_{w_{PFN}}$ et S_{w_H} dans w_H et w_{PFN} :

$$Cm_U(S_{w_{PFN}}, S_{w_H}) = \frac{S_{w_{PFN}}}{a_U \times S_{w_H}^2 + b_U \times S_{w_H} + c_U} \quad (2.6)$$

Avec les coefficients d'ajustement suivants obtenus par la méthode des moindres carrés dans le cas de la géométrie de référence : $a_U = -1.12 \times 10^{-11} \text{ s}^2 \cdot \text{ppm}_U^{-1}$, $b_U = 3.48 \times 10^{-6} \text{ s} \cdot \text{ppm}_U^{-1}$ et $c_U = -7.57 \times 10^{-2} \cdot \text{ppm}_U^{-1}$. On retrouve bien une teneur estimée qui est proportionnelle au signal PFN mesuré, en première approximation, et une correction qui dépend du signal caractéristique de la porosité hydrogène, au dénominateur, selon un polynôme de degré 2.

De la même façon que pour la mesure de porosité hydrogène, on peut dans un premier temps appliquer cette formule 2.6 aux couples de valeurs de $(S_{w_{PFN}}, S_{w_H})$ simulés pour l'étude paramétrique. Les simulations avec des salinités de 100 et 200 $\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$ ont été exclues car irréalistes. Sur la figure 2.35, nous le faisons sans tenir compte des paramètres connus *a priori* comme les caractéristiques du tubage et estimons les valeurs de Cm_U sans correction pour les comparer aux valeurs réellement simulées. Ces résultats sans correction sont moins dispersés que pour la mesure de porosité hydrogène, 65 % des valeurs présentant un écart inférieur à 10 % avec la valeur attendue, et 95 % inférieur à 30 %. Il serait donc possible d'avoir une estimation à 30 % de la teneur en uranium sans même tenir compte des caractéristiques de tubage propres à chaque puits, mais en interprétant les mesures avec les paramètres de la géométrie de référence (tube en PVC de 20 cm de diamètre et 2 mm d'épaisseur), du moins pour la gamme de tubes diamètres étudiée (diamètre de 12 à 32 cm, épaisseurs de 0.2 à 0.6 cm, PVC ou acier).

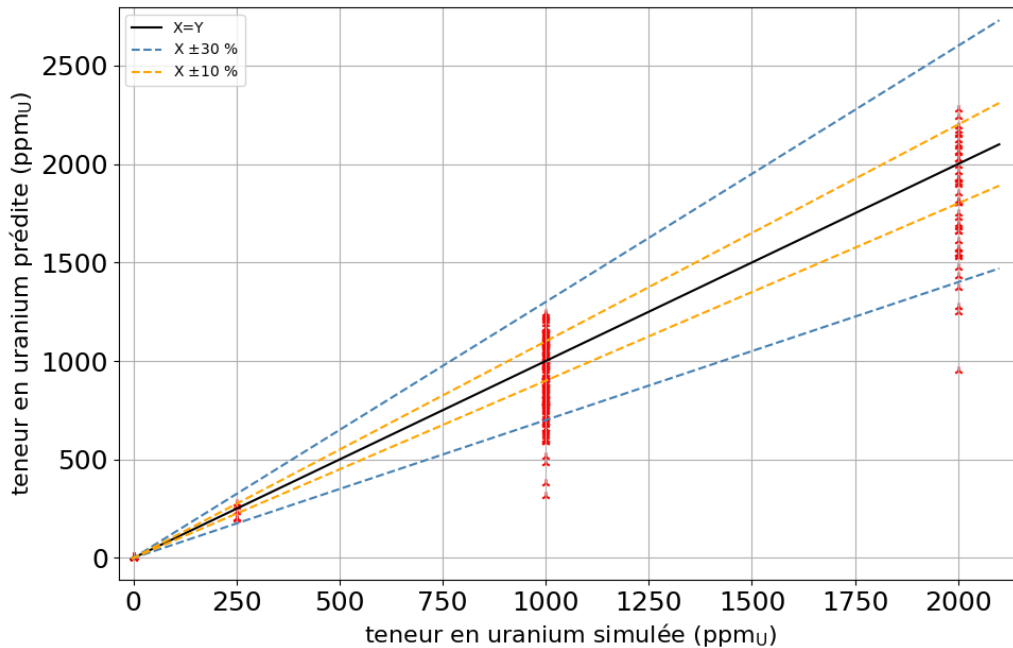


FIGURE 2.35 – Évaluation de la précision de la formule 2.6 pour déterminer la teneur en uranium avec l'ensemble du jeu de données.

De façon inattendue, en limitant le jeu de données aux 86 simulations proches du cas de référence (tubage PVC de diamètre de 20 cm et d'épaisseur 2 mm, sonde plaquée), la dispersion des points reste ici inchangée, (2.36), contrairement à précédemment pour la porosité hydrogène (figures 2.33 vs. 2.34). On observe à nouveau 10 et 30 % d'écarts relatifs pour 65 % et 95 % des données, respectivement, en figure 2.36 (comme en figure 2.35). Ce résultat montre que la méthode est robuste à la géométrie et en fait le dénominateur fonction de S_{wH} dans l'équation 2.6 compense les pertes de comptage sur S_{wPFN} pour les cas défavorables (épaisseur de *mudcake* importante, formation plus absorbante,...). Une mesure de teneur à 30 % d'incertitude ne serait pas suffisamment précise pour la qualification de la méthode via des comparaisons quantitatives à des mesures sur des prélèvements d'échantillons en laboratoire (carottes de minerai), mais elle est suffisante pour une classification des teneurs en uranium en grandes catégories comme souhaité par ORANO (par exemple de 0 à 500 ppm_U, puis de 500 à 1000 ppm_U, etc.) des différentes sections du puits de forage, pour identifier de potentielles veines riches en uranium.

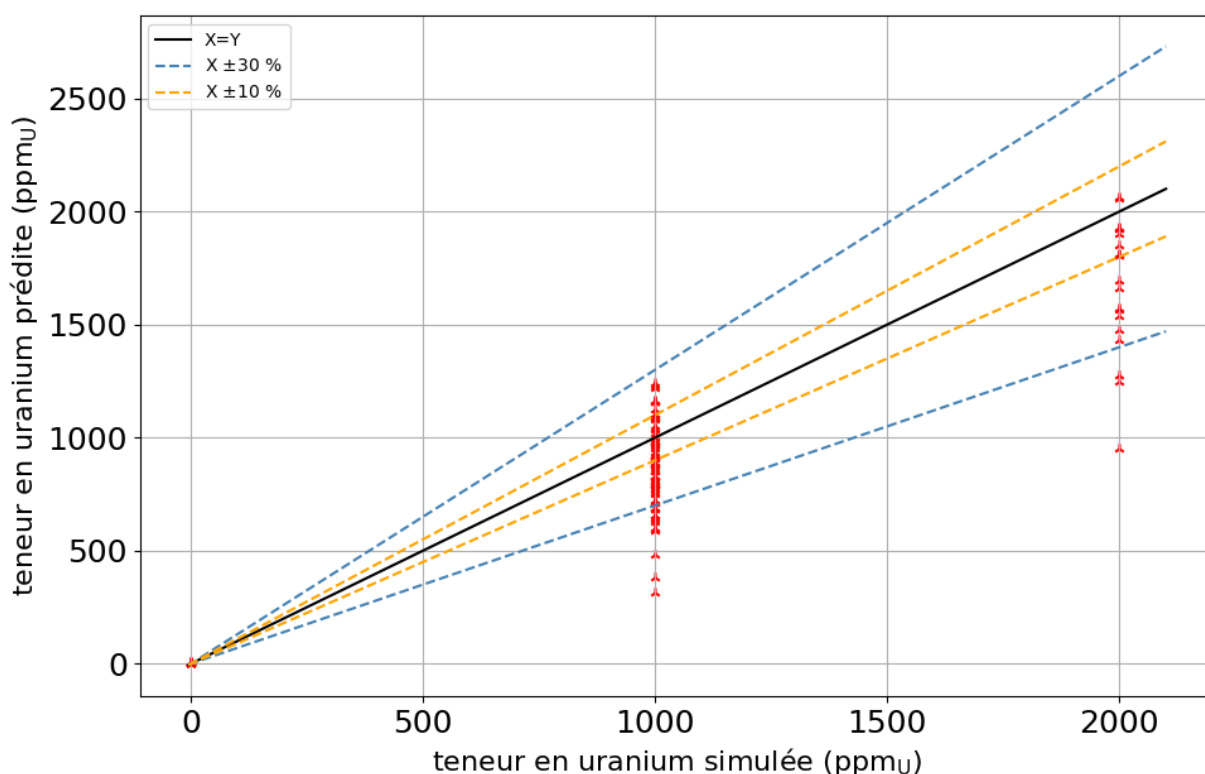


FIGURE 2.36 – Évaluation de la précision de la formule 2.6 pour déterminer la teneur en uranium avec une fraction du jeu de données.

Remarque : Les points qui présentent la plus grande dispersion dans les figures 2.35 et 2.36 correspondent aux simulations réalisées avec de l'eau salée dans les pores. En cas de salinité importante mesurée dans les puits, il serait pertinent de refaire ce type d'étude paramétrique en changeant les hypothèses de départ, et en simulant de l'eau salée dans les pores pour chaque géométrie testée.

2.5 Conclusion

Nous avons exposé dans ce chapitre une méthode de mesure conjointe de la teneur en uranium et de la porosité hydrogène. Cette dernière repose sur l'utilisation d'un bloc de détection neutronique épithermique (compteur à ^3He entouré de polyéthylène et de cadmium) et un générateur de neutrons pulsé. Il est alors possible de réaliser une mesure de la porosité hydrogène par rétrodiffusion neutronique en intégrant le comptage sur une fenêtre w_H qui s'étend de 80 à 350 μs après le début de chaque impulsion neutronique du générateur, qui en délivre chaque seconde 200 (une toutes les 5 ms, de durée 50 μs). Le taux de comptage mesuré est encore très intense dans cette fenêtre w_H , entre 20 000 et 50 000 s^{-1} , ce qui nous permet d'avoir rapidement une très bonne statistique de mesure. Le nombre de coups mesuré sur w_H est proportionnel à l'inverse de la porosité hydrogène Φ_H de la formation géologique et la relation entre le signal et la grandeur recherchée est bijective.

A l'aide du même dispositif, il est également possible de mesurer un signal dû aux neutrons prompts de fissions (PFN) induites sur les noyaux d'uranium 235, sur la fenêtre w_{PFN} qui s'étend de 850 μs à 5 ms (début de l'impulsion du générateur suivante). Ce dernier est, pour des teneurs inférieures à 10 000 ppm_U , proportionnel à la teneur en uranium et à la quantité de neutrons thermiques interrogeant la formation. Le signal PFN décroît avec la même constante de temps que les neutrons thermiques de la formation, or c'est la porosité hydrogène de la formation qui est l'acteur principal de cette dynamique de décroissance. L'estimation de Φ_H réalisée grâce au signal rétrodiffusé nous permet donc de calculer le coefficient de proportionnalité CE_{PFN} reliant le signal mesuré sur w_{PFN} et la teneur en uranium Cm_U .

L'étude de cette méthode de mesure innovante a été réalisée pour une géométrie de référence constituée d'un puits avec un tubage en PVC d'épaisseur 2 mm et de 20 cm de diamètre, avec une sonde plaquée contre le tubage, une formation de silice (SiO_2) complètement saturée en eau et avec une porosité hydrogène de 20 %. Le puits est rempli d'eau salée à 35 g.kg^{-1} et un *mudcake* (gangue de boue) de 2 mm sépare le tubage de la roche à interroger. Grâce au code de transport MCNP6.1 nous avons testé plus de 240 géométries différentes lors d'une étude paramétrique visant à estimer les paramètres d'influence sur les mesures. Les résultats de cette étude montrent que le diamètre de forage et le *standoff* (distance entre la sonde et la paroi du tubage) sont responsables des plus grands écarts de comptage sur les fenêtres w_H et w_{PFN} par rapport à la géométrie de référence. La mesure de teneur en uranium est également affectée par les absorbants neutroniques présents dans la formation, notamment le chlore (mais on peut aussi citer d'autres absorbants neutroniques présents naturellement en faibles quantités B, Li, Gd, Cd). Heureusement, dans la plupart des puits, ce sont des paramètres connus qui peuvent être corrigés. Il est cependant important de souligner que la porosité volumique (fraction de volume réelle des pores, paramètre crucial pour les procédés de lixiviation *in situ*) n'est identique à la porosité hydrogène mesurée que dans un environnement saturé en eau.

Un des avantages principaux de cette nouvelle approche de mesure est de n'utiliser qu'un seul détecteur à ^3He de petite dimension, pour effectuer les deux mesures de teneur en uranium et de porosité hydrogène. Cela signifie une baisse des coûts de production, mais aussi la possibilité de placer un autre détecteur γ complémentaire au sein de la même sonde. L'ajout d'un scintillateur de type LaBr_3 ou CeBr_3 , qui pourrait être placé à environ 50 cm de la source de neutrons, permettrait de réaliser à la fois les mesures d'interrogation neutronique, objet de la présente thèse, des mesures d'activation neutronique avec la spectrométrie des rayonnements γ induits par les neutrons rapides (pendant les impulsions du générateur) ou thermiques (entre celles-ci), apportant ainsi des informations supplémentaires sur la lithologie de la formation géologique, et enfin des mesures de spectrométrie γ passives donnant aussi classiquement accès à la teneur en uranium [3].

Au vu du grand nombre de simulations décrites dans ce chapitre pour les études paramétriques, il serait pertinent d'envisager des techniques d'apprentissage automatique pour tirer partie encore mieux de l'ensemble des informations présentes dans les chronogrammes d'interrogation neutronique pulsée. Nous pourrions par exemple entraîner un réseau de neurones pour prédire les caractéristiques d'intérêt de l'environnement de mesure à l'aide du chronogramme neutronique complet. Une autre approche consisterait à mesurer plusieurs pentes de décroissance du signal après l'arrêt du générateur, et de projeter ces grandeurs dans un espace à grande dimension, par exemple 5, pour ensuite faire une classification des types d'environnement. La méthode présentée dans ce chapitre repose sur de simples comptages dans deux fenêtres d'intégration fixes, or davantage d'informations sont présentes dans l'évolution temporelle du signal, notamment dans la phase de ralentissement des neutrons puis dans la vitesse de décroissance du flux de neutrons thermiques. Lors des différentes études réalisées, nous nous sommes rendus compte que la géométrie de mesure, mais également la porosité hydrogène que l'on cherche à mesurer, pouvaient changer sensiblement la distribution temporelle du signal utile. Une méthode d'interprétation globale du chronogramme neutronique serait à terme plus pertinente et plus riche que les comptages actuels, et il en serait de même avec les spectres γ évoqués plus haut, dans le cas d'une sonde mixte. Dans le chapitre suivant nous présenterons l'ensemble des travaux expérimentaux servant à valider la faisabilité des méthodes de mesure proposées et les modèles de simulation.

Chapitre 3 :

Validation expérimentale de la méthode de mesure conjointe et de son code de calcul

3.1 Introduction

Ce chapitre présente les études de faisabilité expérimentales de la mesure conjointe de porosité hydrogène et de teneur en uranium.

Tel que présenté dans le chapitre 2, notre générateur de neutrons pulsé émet en moyenne 10^8 neutrons par seconde, répartis en 200 courtes salves de $50 \mu\text{s}$ quand nous l'utilisons à 200 Hz avec un taux de travail de 1 %. Un compteur proportionnel à ^3He est situé à 30 cm de la source dans la sonde neutronique et son efficacité totale de détection est estimée par simulation à 0.1 %, il va donc se produire environ 10^7 impulsions électriques par seconde pendant les tirs du générateur. Seulement $30 \mu\text{s}$ après l'arrêt de l'émission neutronique, ce taux de comptage a déjà perdu une décade, mais reste autour de 10^6 s^{-1} . Or, cet instant coïncide avec le début de la fenêtre d'intégration w_H (voir figure 2.6), qui nous permet de faire la mesure de porosité hydrogène. Deux conditions nécessaires à la réalisation de la méthode se présentent alors :

- la capacité de la chaîne d'acquisition (détecteur et électronique associée) à récupérer rapidement suite à une exposition à un taux d'impulsions incident de l'ordre de 10^7 s^{-1} (appelé *ICR* ou taux de comptage entrant) pendant $50 \mu\text{s}$ de façon à pouvoir mesurer le signal sur w_H ;
- la possibilité de mesurer un taux de comptage incident de l'ordre de 10^6 s^{-1} avec des pertes de comptage limitées (taux de comptage sortant *OCR* le plus proche possible de *ICR*) et que l'on puisse corriger.

La vérification de ces critères techniques contraint fortement le choix du compteur ^3He et de l'électronique qui lui est associée. Il faut donc s'assurer que la technique innovante proposée et étudiée par simulation au chapitre 2 puisse être mise en œuvre dans une application industrielle. Nous montrons, dans la première partie de ce chapitre 3 (partie 3.3), la possibilité de mesurer de tels taux de comptage incidents avec une chaîne d'acquisition composée d'un compteur à hélium 3 de type 30NHCS et d'un amplificateur à collection de courant de type G-ADSF10.

Nous présenterons ensuite, dans une deuxième partie (partie 3.4), le prototype de sonde neutronique développé en laboratoire et ses essais dans un fût d'étalonnage développé spécifiquement pour ces travaux de thèse. L'un des objectifs majeurs de cette campagne de mesure est de qualifier les simulations numériques réalisées lors du chapitre 2, à savoir l'ensemble des bibliothèques de données utilisées et la méthodologie de modélisation. La validation du schéma de calcul, via une confrontation aux résultats expérimentaux, est essentielle en vue de confirmer les performances *a priori* de la méthode innovante proposée, estimées par simulation. Deux objectifs se démarquent de cette comparaison expérience - calcul :

- la vérification que le signal utile de chaque mesure (rétrodiffusé pour la porosité, et PFN pour la teneur en uranium) est correctement reproduit par les simulations, aussi bien qualitativement dans son comportement temporel que quantitativement au travers des nombres de coups mesurés dans les fenêtres w_H et w_{PFN} (voir figure 2.9),
- l'estimation du bruit de fond actif (BDF actif) présent dans la fenêtre w_{PFN} qui conditionne intrinsèquement les limites de détection de la mesure de teneur en uranium et qui est généralement très difficile à modéliser.

Les limitations techniques de ces deux mesures, les limites de détection (LD) en ce qui concerne la teneur en uranium, mais aussi la capacité à prédire le comportement de l'outil dans un puits de forage comme étudié en détail au chapitre 2, sont les conditions nécessaires au développement d'un prototype industriel. Les résultats des travaux expérimentaux présentés dans ce chapitre 3 permettent donc de consolider les simulations numériques présentées préalablement. Le bruit de fond actif semblait négligeable dans les résultats de simulation (voir figure 2.9, cas à 0 ppm_U), mais une vérification expérimentale est ici réalisée en vue d'une estimation réaliste des limites de détection de l'outil. Les différentes causes possibles du BDF actif mesuré sont ensuite étudiées et une méthode de simulation est proposée, celle du chapitre 2 sous-estimant largement sa valeur expérimentale.

3.2 Dispositifs expérimentaux

Cette section a pour objectif de présenter l'installation et les dispositifs de mesure communs aux deux campagnes expérimentales présentées dans ce chapitre. Les spécificités de chaque configuration seront quant à elles déclinées dans leur partie respective.

3.2.1 La casemate DANAÏDES

- Présentation de l'installation

Les deux campagnes de mesures ont été réalisées dans la casemate d'irradiation DANAÏDES. À l'origine, la cellule a été conçue pour tester l'instrumentation nucléaire pour le retraitement du combustible nucléaire des réacteurs à eau. Les murs sont constitués (à l'exception de ceux donnant vers le terreplein ou celui situé vers l'extérieur, à gauche de la chicane sur la figure ci-dessous) de béton d'une épaisseur de 1 m recouverts d'une peau en acier de quelques millimètres. La cellule abrite aujourd'hui plusieurs expériences d'INA et deux générateurs de neutrons, dont le GENIE16. La figure 3.2 montre une vue de dessus de la casemate et de son environnement proche :

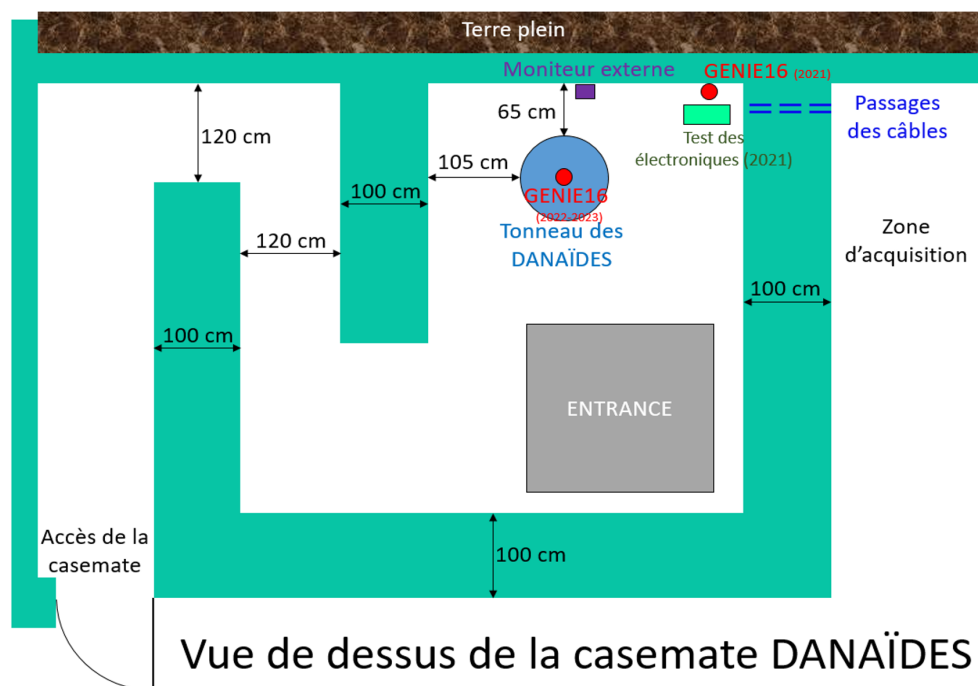


FIGURE 3.1 – Vue en coupe horizontale de la casemate DANAÏDES.

L'accès à la casemate se fait par une chicane, protégée par deux rangées de mur. La surface utile aux expériences de la casemate, est d'environ 20 m² pour 4 m de haut, ce qui permet en temps normal de faire cohabiter de 2 à 3 dispositifs expérimentaux. Lors des deux campagnes de mesures présentés dans ce chapitre, nous avons partagé la casemate avec le projet ENTRANCE [72] représenté dans le coin en bas à droite. Le passage des câbles d'alimentation du GENIE16, des différents détecteurs, mais aussi de collection des signaux, s'effectue à travers deux gouttières en haut à droite de la figure 3.2. Le mur de droite donne directement sur la zone d'acquisition où sont présents l'alimentation haute tension du GENIE16, le châssis *NIM* avec les modules d'alimentation (haute tension) des détecteurs à ³He et de traitement de leur signal analogique (amplification et discrimination par seuil bas, voir fenêtre), la carte de datation (MEDAS) des impulsions logiques générées à l'issue du seuillage et l'ordinateur d'acquisition associé. Un compteur ³He de type 30NH15, fixé à un support mural, sert de moniteur externe aux dispositifs de la casemate.

- Modélisation MCNP de la casemate DANAÏDES

Afin de simplifier la géométrie de mesure, nous avons fait le choix de ne modéliser que la zone expérimentale de la casemate. Les distances entre les différents murs, le sol et le plafond sont celles de l'installation à 10 cm près. Les différentes canalisations, les gouttières et le pont roulant suspendu ne sont pas modélisés. Les parois de la casemate ont une épaisseur infinie car nous ne disposions pas des plans de DANAÏDES au début de la thèse, mais cette différence avec les murs réels (épaisseur 100 cm) n'a pas d'incidence significative sur les comptages simulés.

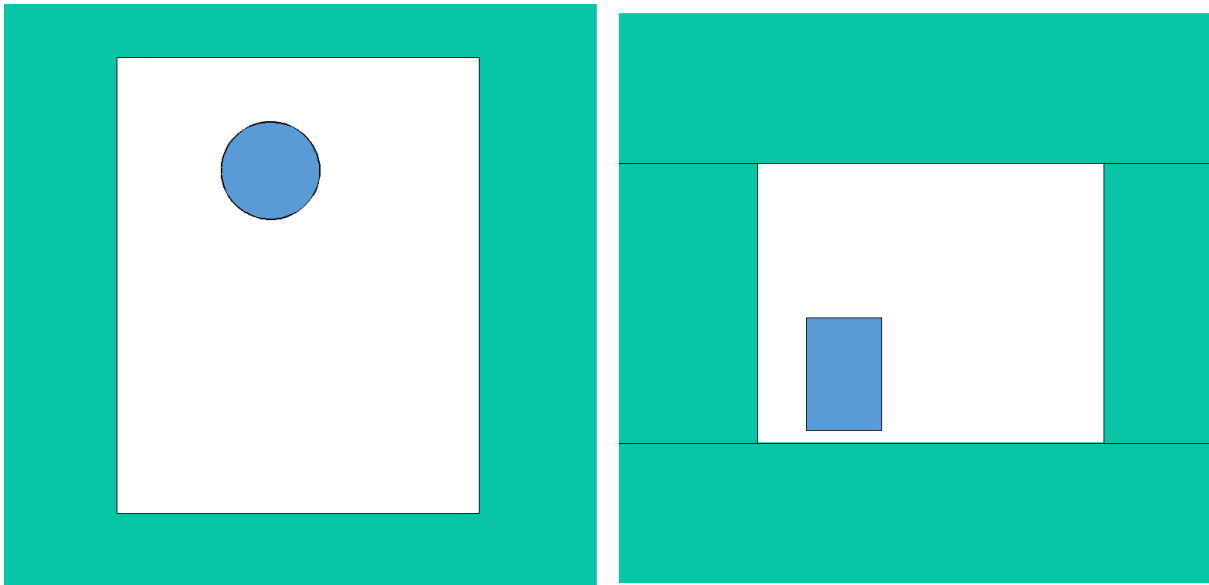


FIGURE 3.2 – Vue en coupe horizontale (à gauche) et verticale (à droite) de la casemate DANAÏDES, réalisée via MCNPX-VISED [23].

La composition chimique du béton est celle utilisée couramment au laboratoire [73]. Les éléments principaux (jusqu'à une fraction massique de 0.1 %) sont répertoriés dans le tableau 3.1 :

TABLEAU 3.1 – Modélisation du béton de DANAÏDES (densité = 2.3), murs, plafond et sol.

Élément	Librairie MCNP	Fraction massique (%)
^{16}O	8016.80c	50
^{28}Si	14028.80c	25
^{40}Ca	20040.80c	10
^{27}Al	13027.80c	3.8
$^{\text{nat}}\text{C}$	6000.80c	2.2
^{56}Fe	26056.80c	1.6
^{29}Si	14029.80c	1.3
^1H	1001.80c	1.1
^{39}K	19039.80c	1.1
^{23}Na	11023.80c	1.0
^{30}Si	14030.80c	8.8×10^{-1}
^{24}Mg	12024.80c	4.2×10^{-1}
^{44}Ca	20044.80c	2.5×10^{-1}
^{35}Cl	17035.80c	2.4×10^{-1}
^{208}Pb	82208.80c	1.1×10^{-1}
^{54}Fe	26054.80c	1.0×10^{-1}

3.2.2 Les compteurs ^3He 30NH15 et 30NH15CS

Cette section est dédiée à la présentation des deux compteurs utilisés lors de chacune des campagnes de mesures exposées dans ce chapitre. Il s'agit des compteurs 30NH15 et 30NH15CS développés par Dextray, division de Eurisys Mesures, devenue CANBERRA, aujourd'hui département de Mirion Technologies.

- Caractéristiques et modélisation

Les compteurs 30NH15 et 30NH15CS sont des tubes de 2.5 cm de diamètre en acier inoxydable de 0.5 mm d'épaisseur, remplis avec du gaz ^3He à une pression de 6 bar. Ils pèsent 252 g et leur capacité électrique vaut 9 pF. La connectique HN à leur extrémité permet d'alimenter le fil central anodique (tungstène) en haute tension, mais aussi de collecter le signal produit dans le compteur. La figure 3.3 montre un compteur 30NH15 et sa modélisation MCNP associée.

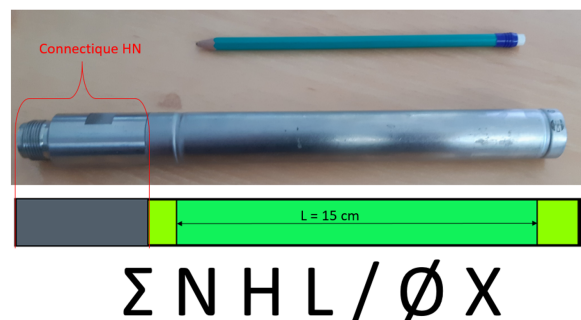


FIGURE 3.3 – Comparaison d'un compteur 30NH15 et de son modèle MCNP réalisé via MCNPX-ViSED [23], et nomenclature des compteurs proportionnels de CANBERRA (voir texte ci-après).

Σ représente la sensibilité théorique aux neutrons thermiques (25 meV) en c.s^{-1} par $\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$. La sensibilité estimée pendant le développement des 30NH15 et 30NH15CS était de 30 c.s^{-1} par $\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$, alors que la valeur effective est de 27 c.s^{-1} par $\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$. Théoriquement, un compteur 30NH15 est donc deux fois plus sensible qu'un compteur 15NH15. N et H signifient respectivement Neutron et Hélium 3. L est la longueur active exprimée en centimètre. Nous voyons bien sur la figure 3.3 la présence des zones mortes de part et d'autre de la zone active de 15 cm. Les symboles qui suivent sont optionnels, \emptyset représenterait alors le diamètre exprimé en centimètre si ce dernier est différent de 2.5 cm. Enfin CS, pour *Curent Special* (spécial collection de courant), désigne les compteurs optimisés pour des mesures avec un amplificateur en mode courant de type G-ADSF10 (ou ADS/7820 + HT/7821) présenté en partie 3.2.4.

Remarque : Les deux compteurs ne présentent pas de différences géométriques, seuls le mélange de gaz de remplissage est différent (voir partie 1.2.2).

Il est nécessaire de régler la haute tension appliquée à l'anode du compteur en même temps que le seuil de discrimination des impulsions produites dans le compteur. En effet, il faut que la différence de potentielle appliquée dans le volume de détection soit suffisante pour que le compteur fonctionne en mode proportionnel. Pour déterminer le point de fonctionnement de chaque chaîne d'acquisition, nous avons utilisé une source de ^{252}Cf et relevé l'évolution des taux de comptage des compteurs en fonction de la haute tension et du seuil de discrimination appliqués.

- Paliers de Haute Tension et courbe de seuil du compteur 30NH15 avec un amplificateur à collection de courant G-ADSF10

Au LMN, pour les 30NH15 couplés à des G-ADSF10, les paramètres de fonctionnement nominaux sont de 1500 V pour la haute tension et de -400 mV pour le seuil de discrimination. Dans un premier temps, nous avons appliqué ce seuil classique de -400 mV tout en modifiant la tension appliquée au compteur. La figure 3.4 représente l'évolution du taux de comptage résultant du changement de tension.

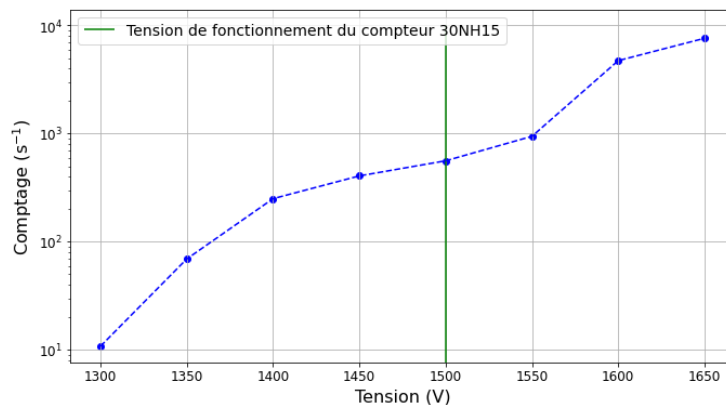


FIGURE 3.4 – Évolution du taux de comptage en fonction de la tension appliquée à un compteur proportionnel 30NH15 couplé à un amplificateur G-ADSF10 avec un seuil de discrimination à -400 mV.

Nous pouvons voir un palier entre 1400 V et 1550 V, dans cette région l'évolution du taux de comptage reste relativement limitée au regard de la variation de tension appliquée au détecteur. La valeur de 1500 V est suffisamment éloignée des extrémités du plateau et présente un taux de comptage plus intéressant qu'à 1450 V (qui est en revanche plus éloignée du régime d'avalanche). Dans la figure 3.5 nous gardons une tension de 1500 V et nous faisons varier le seuil à son tour.

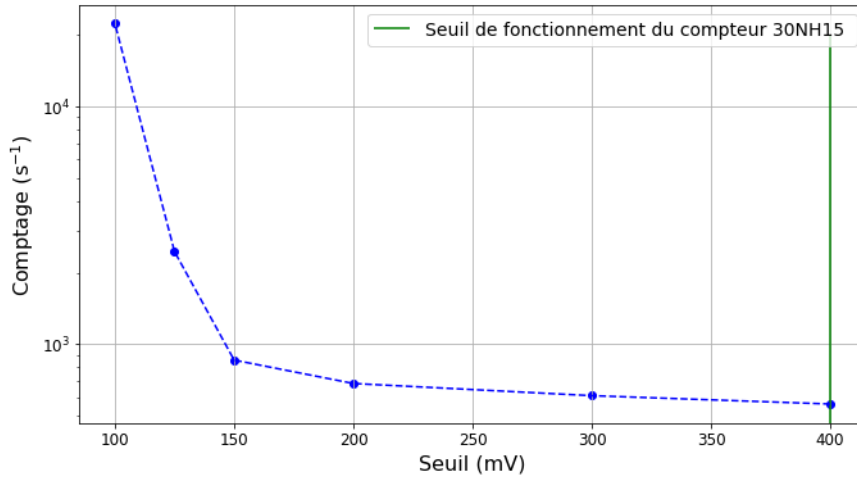


FIGURE 3.5 – Évolution du taux de comptage en fonction de la valeur absolue du seuil de discrimination appliqué à un compteur proportionnel 30NH15 couplé à un amplificateur G-ADSF10 avec une tension de 1500 V.

En l'absence de discrimination en tension du signal, le bruit électronique donne lieu à un comptage parasite très élevé. C'est ce que l'on observe en-dessous de -125 mV sur la figure 3.5. Une fois ce bruit éliminé, le détecteur peut toutefois s'avérer sensible aux rayonnements γ (mesures de déchets radioactifs irradiants ou ici mesures à proximité du générateur de neutrons qui génère des rayonnements γ prompts d'activation) et il peut s'avérer nécessaire d'augmenter encore le seuil (voir l'annexe A). Un compromis doit être trouvé entre la suppression totale du signal γ parasite et une perte d'évènements utiles dus à des neutrons. Nous choisissons pour ces travaux de thèse un seuil de discrimination de -400 mV privilégiant la suppression du bruit γ , au prix d'une perte de signal utile neutronique de l'ordre de 40 % ; nous y reviendrons en partie 3.3.2

- Paliers de Haute Tension et courbe de seuil du compteur 30NH15CS avec un amplificateur en mode courant G-ADSF10

L'utilisation de compteurs 30NH15CS étant beaucoup moins commune au LMN, nous avons dû déterminer les paramètres de fonctionnement nominaux. Nous sommes partis des mêmes valeurs a priori que pour le 30NH15 en fixant le seuil de discrimination à -400 mV mais nous avons dû augmenter significativement la haute tension, comme le montre la figure 3.6.

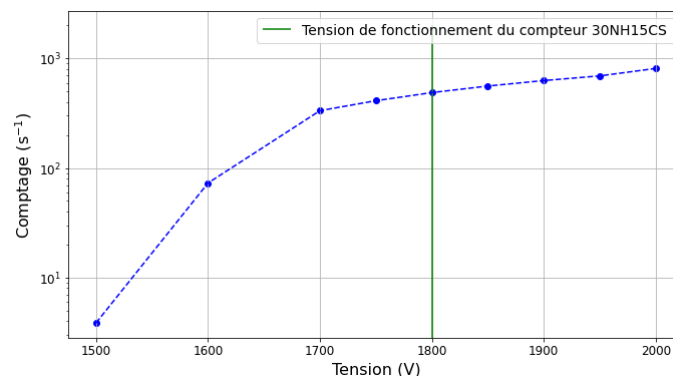


FIGURE 3.6 – Évolution du taux de comptage en fonction de la tension appliquée à un compteur proportionnel 30NH15CS couplé à un amplificateur G-ADSF10 avec un seuil de discrimination à -400 mV.

Nous avons augmenté progressivement la tension appliquée au compteur jusqu'à la limite admise par l'amplificateur, autour de 2000 V, et nous observons alors un palier remarquablement long de 300 V. Par mesure de précaution, nous avons fixé la tension appliquée au 30NH15CS à 1825 V, ce qui permet d'être assez éloigné de l'extrémité basse du plateau, sans trop solliciter l'amplificateur.

Sur la figure 3.7, nous faisons varier le seuil de discrimination en partant de -400 mV pour une tension constante de 1825 V. Le taux de comptage dépasse 1000 s^{-1} pour un seuil de -140 mV comme pour le 30NH15 standard. Afin de pouvoir comparer les deux chaînes efficacement, nous fixons le couple (tension ; seuil) de sorte à ce que le comptage mesuré par la chaîne de détection 30NH15CS + G-ADSF10 soit identique à celui de la chaîne 30NH15 + G-ADSF avec ses paramètres nominaux (561 s^{-1}). Nous avons donc utilisé pour toutes les études de ce chapitre une tension de 1800 V et un seuil de -300 mV. On peut noter que des études antérieures [44] montrent qu'un seuil de -250 mV est suffisant pour s'affranchir du bruit électronique et de l'essentiel du bruit induit par les rayonnement γ .

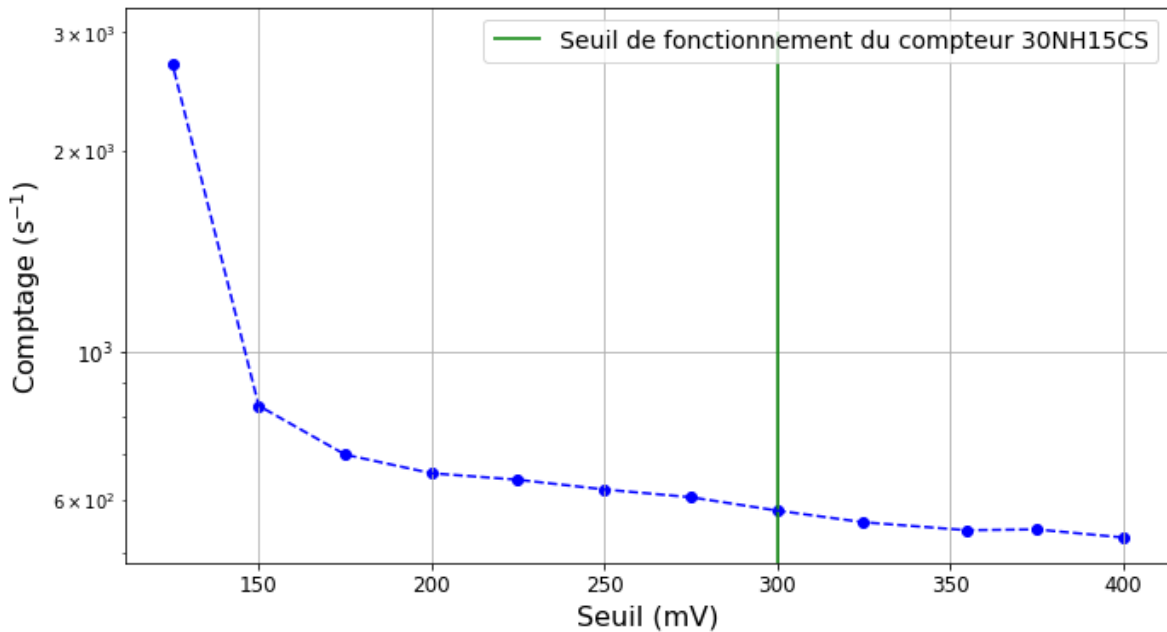


FIGURE 3.7 – Évolution du taux de comptage en fonction de la valeur absolue du seuil de discrimination appliqué à un compteur proportionnel 30NH15CS couplé à un amplificateur G-ADSF10 avec une tension de 1825 V.

Remarque : Les amplificateurs à collection de charge ACH-NA98 sont utilisés quotidiennement dans un poste de mesure neutronique du laboratoire. Ils sont le plus souvent utilisés avec une haute tension de 1250 V et un seuil de -200 mV. Nous avons gardé ces réglages pour notre campagne de mesure de 2021. Avec notre géométrie de mesure pour les paliers de tension et de seuil, nous mesurons un taux de comptage de 676.1 s^{-1} , soit environ 20 % de plus qu'avec le G-ADSF10. S'il permet une meilleure efficacité de détection, l'ACH-NA98 est cependant plus sensible au bruit γ que le G-ADSF10 et, nous le verrons, aux pertes à fort taux de comptage.

3.2.3 Amplificateurs et carte de datation

- Amplificateur en mode courant G-ADSF10

L'amplificateur G-ADSF10 est le fruit d'une collaboration entre le CEA/DTA/DEIN et Inter-technique (dont le département « mesures » est devenu Eurisys Mesures). C'est un amplificateur en mode courant ; sa constante de temps associée au circuit électronique ($\tau = RC$) est petite devant la durée d'une impulsion produite par le détecteur (voir annexe A). Ce type d'amplificateur permet de mesurer le courant débité instantanément dans le détecteur à chaque capture neutronique dans l' ^3He , permettant à la fois de limiter les empilements d'impulsions et d'adapter l'impédance en entrée à l'aide d'une résistance de charge de faible valeur. Conçu pour réaliser des mesures déportées, comme dans l'usine de retraitement de la Hague, plusieurs centaines de mètres de câble peuvent séparer l'amplificateur du détecteur ou du bloc de détection. Dans notre cas, nous n'utilisons qu'environ 15 m de câble. Cet amplificateur se présente sous la forme d'un double module *NIM* ($222 \times 246 \times 68.6 \text{ mm}^3$). La figure 3.8 montre un G-ADSF10 dans un châssis *NIM*.

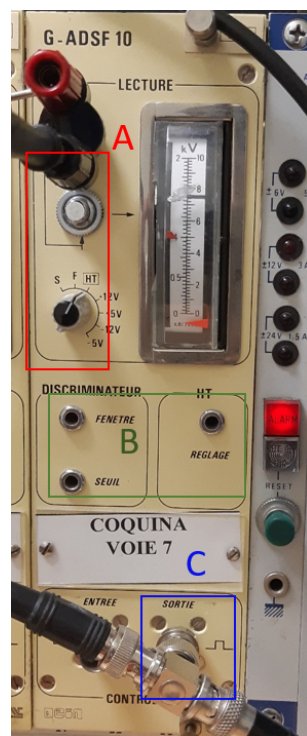


FIGURE 3.8 – Photographie d'un amplificateur G-ADSF10 dans un châssis *NIM*.

Dans la zone A, à côté de l'afficheur à aiguille, se trouve une sortie de lecture pour mesurer les réglages de l'amplificateur. Le potentiomètre permet de passer d'une grandeur à l'autre, ici la haute tension appliquée au compteur ^3He . La zone B permet de régler l'amplificateur avec une vis par paramètre (seuil, largeur de fenêtre du discriminateur, haute tension appliquée au compteur).

Finalement dans la zone C nous retrouvons la sortie logique de l'amplificateur à côté d'une entrée logique pour faire une synchronisation (non utilisée dans nos campagnes expérimentales). Lorsque le signal sortant du compteur satisfait les conditions de déclenchement, par exemple au passage du seuil, un signal logique TTL (0-5 V, 100 ns), est émis par cette sortie. Il est également possible, en changeant la position d'un cavalier interne, de visualiser sur une sortie placée en face arrière le signal analogique, montré sur la figure 3.9.

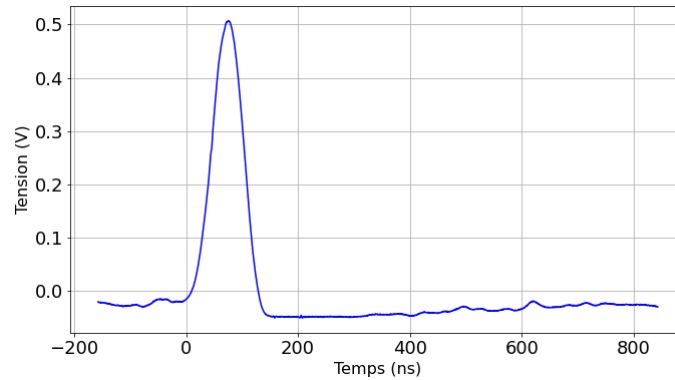


FIGURE 3.9 – Acquisition à l'oscilloscope du signal analogique en sortie d'un amplificateur G-ADSF10 correspondant à une capture de neutron dans un compteur à ^3He de type 30NH15CS [6].

En fonction de l'amplitude de l'impulsion, qui dépend de la collecte des charges dans le compteur et de la haute tension appliquée, la largeur du signal varie entre 100 et 200 ns. Le retour à la ligne de base dure environ 600 ns de plus.

- Préamplificateur de charge ACH-NA98

Le préamplificateur ACH-NA98 développé par Eurisys Mesures (aujourd'hui Mirion Technologies) fonctionne en mode collection de charge, la constante de temps du circuit électronique est alors plus grande que la durée du signal produit par le compteur (voir A). La durée du signal en sortie est beaucoup plus longue (plus de 10 fois) que lors d'une mesure en collection de courant, ce qui induit un taux d'empilement bien plus important pour le même taux d'impulsions incident. Cependant, le signal sortant de ce type d'amplificateur présente un bien meilleur rapport signal sur bruit électronique, ce qui permet donc de placer un seuil permettant de perdre moins de signal utile. A l'inverse, l'amplificateur de courant G-ADSF10 du paragraphe précédent possède un rapport signal sur bruit électronique plus faible ; il n'y a pas de vallée bien marquée entre les deux où placer le seuil. Nous observons usuellement 20 % de différence sur le signal utile, comme mentionné plus haut, entre les deux types d'amplificateurs. Plus compact que le G-ADSF10 ($134 \times 59 \times 23 \text{ mm}^3$), cet amplificateur doit être utilisé au plus près du compteur proportionnel pour ne pas augmenter la capacité du câble, laquelle réduit significativement l'amplitude du signal de charge collecté. Il nécessite d'être alimenté en $\pm 12 \text{ V}$ comme le montre la figure 3.10. La haute tension transmise au compteur doit également être fournie par une alimentation dédiée (alors qu'elle est incluse dans le G-ADSF10, ce qui explique en partie pourquoi il est moins compact, outre sa conception plus ancienne).



FIGURE 3.10 – Photographie d'un préamplificateur ACH-NA98.

Nous pouvons voir sur la figure 3.10 que le seuil de discrimination de l'ACH-NA98 est lui aussi réglable directement sur le préamplificateur. Une entrée et une sortie logique, ainsi qu'une sortie analogique sont présentes comme pour le G-ADSF10. La figure 3.11 montre le signal mesuré à cette dernière.

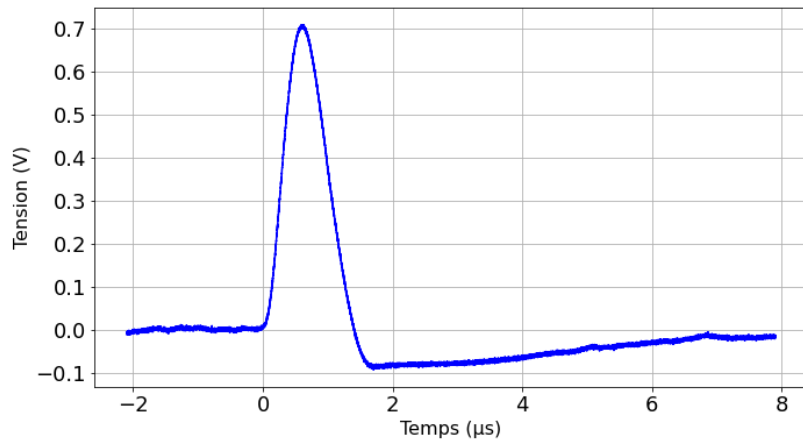


FIGURE 3.11 – Acquisition à l'oscilloscope du signal analogique d'un amplificateur ACH-NA98 correspondant à une capture de neutron dans le compteur à ^3He de type 30NH15CS [6].

Nous pouvons voir, en comparant à la figure 3.9, que l'échelle de temps est environ dix fois plus longue. La largeur de l'impulsion varie de 1 à 2 μs en fonction de l'amplitude, et il faut attendre environ 5 μs pour revenir à la ligne de base.

- Carte de datation MEDaS

Pour la datation des impulsions logiques délivrée par les amplificateurs, nous utilisons la carte MEDaS, Multi-Event Datation System, produite par CeSigma [74], montrée en figure 3.12.

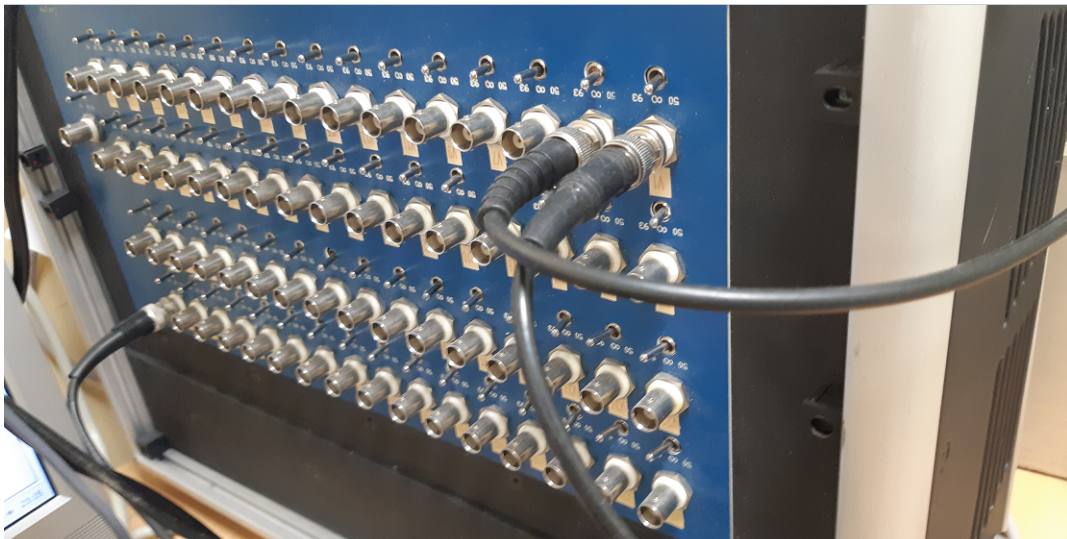


FIGURE 3.12 – Carte d'acquisition MEDaS 64 voies. Les voies 1 et 3 sont respectivement connectées aux sorties logiques correspondant au compteur de référence et au moniteur externe. La voie 64 est reliée à la sortie de synchronisation du châssis d'alimentation du GENIE16.

La carte de datation dispose de 64 voies d'entrée et d'une voie de synchronisation supplémentaire. Il est possible de régler la résistance de chaque entrée indépendamment sur 50Ω , 93Ω ou en Haute Impédance (HI). La durée minimum requise des signaux en entrée est de 100 ns, pour une tension minimum autour de 3 V. L'échantillonnage (pas de temps de la datation) descend jusqu'à une valeur de 25 ns. Il est possible de dater les signaux arrivant à la volée dans une mesure stationnaire ou, en cas de mesure pulsée, de les sommer cycle par cycle par rapport à une référence de temps externe en mode MCS (*multichannel scaling*). Nous utiliserons systématiquement ce mode d'acquisition en synchronisant le début de la séquence sur le signal TTL fourni par le GENIE16 (*trigger*) à chaque bouffée de neutrons émise. Les sorties logiques des amplificateurs sont visualisées sur l'oscilloscope ($2 M\Omega$) pour vérifier la synchronisation par rapport au trigger, et envoyées en parallèle sur la carte de datation (50Ω).

- Visualisation du signal au cours d'une salve de neutrons

Sur la figure 3.13, nous pouvons voir une capture d'écran de l'oscilloscope, pendant un tir de $800 \mu\text{s}$ du générateur de neutrons. La voie en rouge représente le signal de synchronisation émis par le GENIE16, c'est un signal carré de 5 V d'amplitude qui couvre la durée théorique de l'émission neutronique. Entre les salves d'émission, le signal est à 0 V. La voie en bleu représente la sortie logique du G-ADSF10 relié à notre compteur principal (un 30NH15CS). Un signal TTL est émis à chaque fois qu'une impulsion du compteur passe le seuil de discrimination de l'électronique. Ce dernier, réglé à -300 mV, nous permet de voir essentiellement les neutrons capturés dans le compteur ^3He et non les rayonnements γ prompts d'activation, notamment de diffusion inélastique.

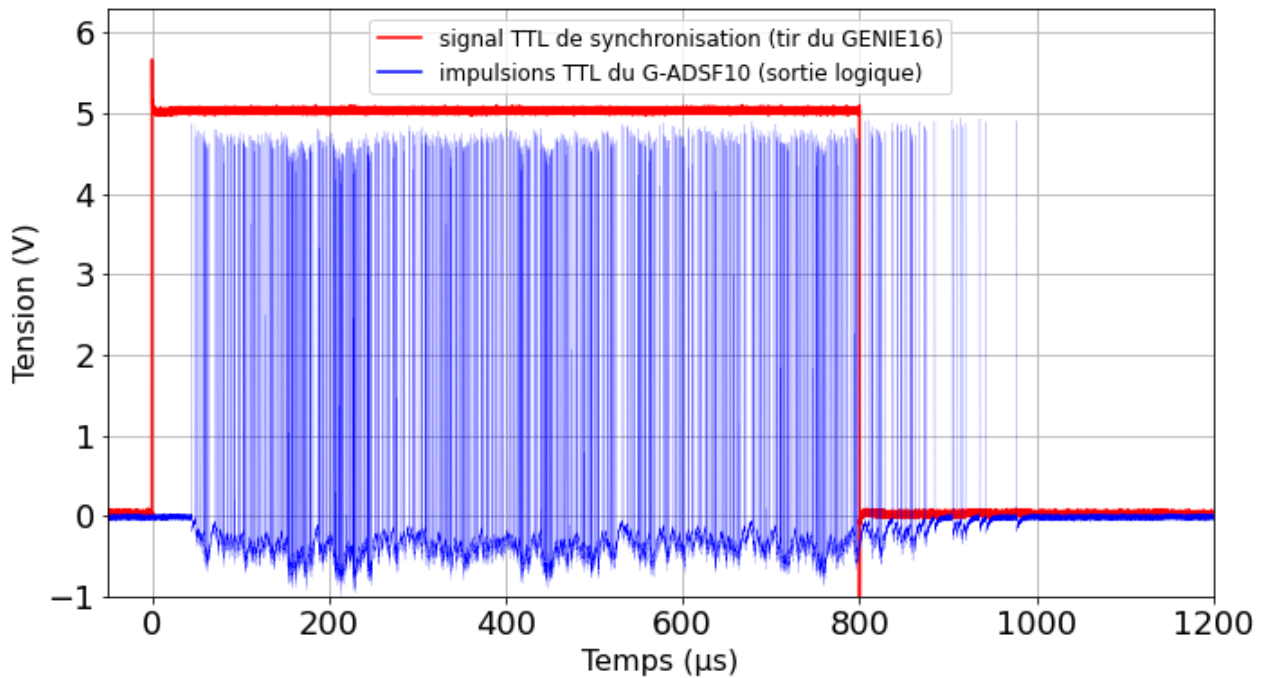


FIGURE 3.13 – Acquisition à l'oscilloscope du signal correspondant à un tir de $800 \mu\text{s}$ du GENIE16 (émission moyenne de $2 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$, taux de travail de 10 %, donc émission instantanée de $2 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$ pendant l'impulsion carrée en rouge). Chaque impulsion de la courbe bleue correspond à un signal TTL de la sortie logique de l'amplificateur de courant G-ADSF10, et donc à une capture neutronique dans le compteur à ^3He de type 30NH15CS [6].

La figure 3.13 montre une seule salve de neutrons avec une émission moyenne de $2 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$, une efficacité de détection totale d'environ 0.1 % et une fréquence de 125 Hz. Cela représente en moyenne 1600 neutrons mesurés par salve (704 TTL présents sur la figure). Après chaque impulsion il y a un overshoot négatif, et le retour à la ligne de base s'effectue en $12 \mu\text{s}$. On constate que lorsqu'il y a de nombreux événements, cela peut conduire à une forte déformation de cette dernière par empilement. Heureusement, le seuil de détection de la carte électronique est suffisamment bas pour ne pas induire un temps morts supplémentaire pour les émissions qui nous intéressent.

On observe un temps de latence d'environ $45 \mu\text{s}$ entre le début du signal de synchronisation, et le premier TTL émis par le G-ADSF10. Ce délai correspond au temps de mise en marche effective du tube à neutrons, et est appelé « retard à l'amorçage ». Sa durée dépend vraisemblablement du courant crête, mais aussi de la durée de la séquence d'émission. Il fait l'objet d'une étude succincte dans la partie 3.2.4.

3.2.4 Générateur de neutrons pulsé GENIE16 LL

- Différences avec le GENIE16 GT et le GENIE16 LL

La plupart des simulations réalisées dans le cadre de cette thèse sont basées sur le modèle numérique du Module d'Emission Neutronique (MEN) version GT présentée au chapitre 2. Le MEN a été cependant changé en 2018, au profit de la version LL, et nous nous sommes rendu compte de différences significatives lors de la réalisation du dispositif de mesure présenté dans la partie 3.4. La conception de la maquette de sonde neutronique, basée sur les dimensions de l'ancien MEN, ont conduit au ré-usinage de la pièce de maintien de ce dernier dans le puits du fût de sable étalon, les diamètres n'étant pas compatibles.

Ne disposant que du modèle interne de la version GT développé au laboratoire et présentant un bon accord avec les observations antérieures à ma thèse, nous avons développé un modèle similaire basé sur les plans de l'enveloppe extérieure mais sans changer la description interne. Cette modélisation du MEN LL n'est donc, *a priori*, pas rigoureusement exacte mais elle s'appuie sur les dimensions extérieures réelles du module et sur des éléments internes réalistes de son homologue GT.

La figure 3.14 présente des coupes transversales des modèles des deux MEN, respectivement LL (à gauche) et GT (à droite) réalisées avec MCNPX-ViSED. Les principales côtes, tirées du manuel utilisateur [58], sont indiquées à côté de chaque modèle. La différence la plus importante pour notre géométrie de mesure est la distance entre la source de neutrons et l'extrémité fine du MEN. Une différence de presque 5 cm induit, pour des mesures proches du générateur, des écarts d'efficacité de détection géométrique importants. Le décentrage de la source varie de 0.5 cm d'un MEN à l'autre, ce qui peut également affecter nos résultats de simulations, notre géométrie de mesure étant asymétrique.

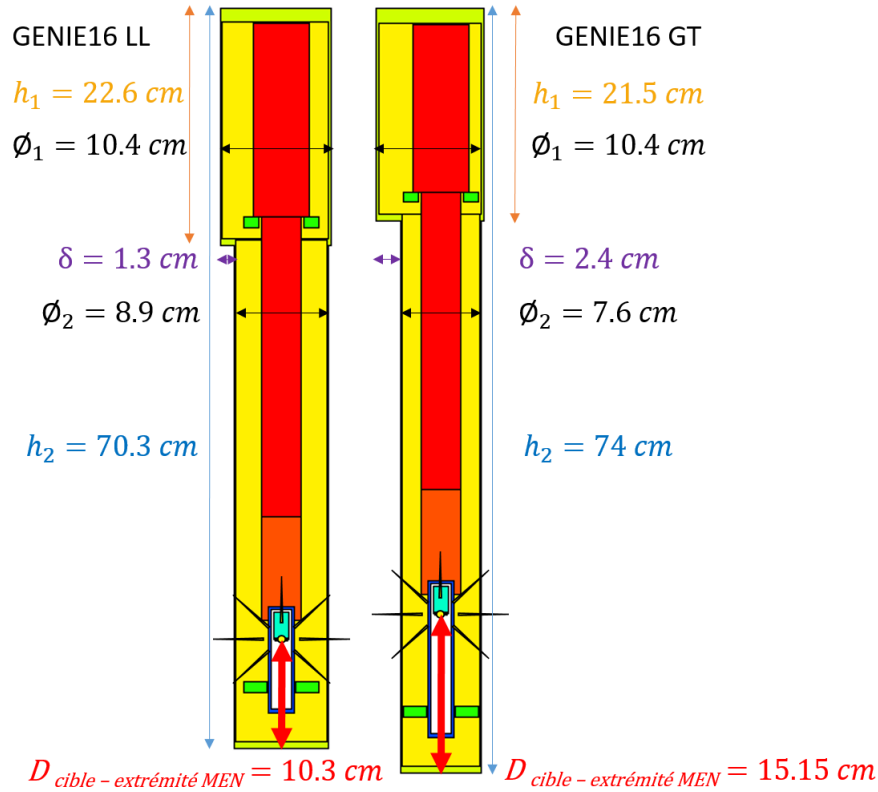


FIGURE 3.14 – Comparaison des modèles de Module d'Émission Neutronique simulés avec MCNP, coupes transversales réalisées avec MCNPX-ViSED [23].

- Réglages de l'émission du GENIE16

Le taux de production de neutrons du tube dépend du nombre d'ions (D^+ ou T^+) et de molécules ionisées (D^+T , DT^+ , D_2^+ , T_2^+) accélérés vers la cible tritiée, et de l'énergie de ces derniers. L'émission neutronique est donc pilotée par deux paramètres, respectivement l'intensité du courant dans le tube et la très haute tension (THT) qui lui est appliquée. D'après le manuel utilisateur [58], nous pouvons faire varier le courant de 0 à $83 \mu A$, et la THT de 10 à 120 kV. L'émission neutronique théorique ($S_{logiciel}$ donnée par le logiciel SODERN de pilotage du générateur) évolue alors selon l'équation (3.1) :

$$S_{logiciel} = k \times I \times V^P \quad (3.1)$$

Avec I et V , respectivement l'intensité du courant cible (en μA) et la THT (en kV), k et P des constantes propres au MEN. Nous avons noté cette émission neutronique théorique pour chaque combinaison de I et V au cours des deux campagnes expérimentales. En utilisant la méthode des moindres carrés nous avons déterminé ces constantes : $k = 1.4$ et $P = 3.2$ avec $R^2 = 0.999$.

Le réglage de V et I permet d'ajuster l'émission moyenne, à savoir le nombre de neutrons émis par seconde, quel que soit le mode d'émission (continue ou pulsée). L'émission instantanée est égale à la moyenne en mode continu, mais en mode pulsé elle est gouvernée par les paramètres temporels du tube (durées d'excitation et de répétition, voir figure 1.10 du chapitre 1) et on peut calculer l'émission instantanée pendant les impulsions du générateur en divisant l'émission moyenne par le taux de travail (*duty cycle*).

Remarque : Il faut attendre quelques minutes après l'allumage du générateur pour que I et V se stabilisent sur les valeurs de consigne entrées par l'utilisateur afin que l'émission neutronique elle-même se stabilise.

La seule estimation de l'émission neutronique moyenne fournie par le logiciel de contrôle du générateur ne suffit pas pour nos mesures. SODERN a réalisé en 2018 une mesure d'activation d'une cible de cuivre pour déterminer l'émission du tube. Là où le logiciel affichait $1.66 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$, l'étalonnage par activation a fourni une valeur de $1.64 \times 10^8 \text{ s}^{-1} \pm 10 \%$.

Remarque : nous utiliserons cette incertitude relative de 10 % sur l'émission neutronique liée à la calibration pour les inclure dans nos estimations des incertitudes de simulation. C'est ce qui justifie les barres d'erreurs des figures indiquant une émission neutronique ou le taux d'impulsions incident estimé du compteur.

D'autres sources d'incertitudes peuvent entacher notre estimation de l'émission neutronique, comme la décroissance radioactive du tritium présent à la fois dans la cible et dans le mélange D-T du réservoir de la source d'ions. L'usure de la cible avec la consommation du tritium par réaction D-T est une autre cause de diminution de l'émission neutronique au cours du temps, mais l'utilisation d'un mélange D-T permet d'y réimplanter du tritium lors du bombardement. D'après SODERN, il n'existe pas d'études de long terme ni sur suffisamment de générateurs pour pouvoir caractériser précisément le vieillissement des tubes. Sur les postes fixes (comme les cellules de mesure des colis de déchets radioactifs), un moniteur à poste fixe permet de suivre cette évolution, mais ce n'est pas le cas du générateur utilisé pour cette thèse qui n'a pas fait l'objet d'un suivi régulier depuis son acquisition en 2018. En première approximation, nous ne considérerons donc que le terme de décroissance radioactive du tritium, qui est simple à calculer (voir ci-dessous). Enfin, la formule (3.1) a été établie pour prédire l'émission du générateur dans ses conditions d'utilisations nominales. En effet, au-dessus de $0.3 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$, les observations suivent bien l'évolution théorique. Cependant, à plus basse émission, cette dernière est surestimée. Ce dernier point nous a encouragé à utiliser un moniteur externe et à effectuer un étalonnage, grâce à ce dernier, pour chacune des campagnes de mesure.

- Étallonages pour la campagne de mesure de 2021

Cette campagne s'est déroulée entre mars et mai 2021, le terme de vieillissement de la source de tritium pour cette campagne vaut donc $k_{\text{décroissance}_{21}} = 0.88$.

Remarque : Si on applique cette correction à la figure 3.13, le nombre de neutrons théoriques (aux incertitudes près) que nous devrions compter dans cette bouffée est de 1408 car l'émission moyenne affichée par le logiciel de contrôle du générateur était de $2 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$. L'efficacité de détection totale simulée avec MCNP est d'environ 0.1 %, avec une incertitude relative potentiellement importante car le détecteur est proche du générateur (voir figure 3.19), et le modèle de ce dernier ne nous est pas connu avec certitude (figure 3.14). Enfin, en tenant compte de la fréquence de 125 Hz, ce qui nous donne théoriquement 1600 neutrons mesurés par bouffée en moyenne, le total est multiplié par 0.88 pour obtenir 1408 coups. Or, nous mesurons 704 impulsions TTL dans la copie écran de l'oscilloscope (figure 3.13), ce qui, corrigé des pertes intrinsèques au G-ADSF10 (calculées en partie 3.3.2) nous donne 1214 impulsions incidentes. Cela confirme le bon ordre de grandeur de l'émission ainsi estimée, sans occulter l'incertitude importante.

Sur la figure 3.15, nous avons représenté différentes acquisitions réalisées avec notre moniteur externe pour une gamme d'émissions théoriques (affichées par le logiciel de contrôle et multipliées par le facteur 0.88) allant de 0.13×10^8 à $4.16 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$. Le but de cette campagne de mesure étant d'explorer les limites de notre électronique à fort taux de comptages, la plage d'émissions testée pour l'étalonnage est plus large que pour la campagne de mesure suivante (2022-2023 ci-après) visant à qualifier les performances de la sonde dans des conditions nominales.

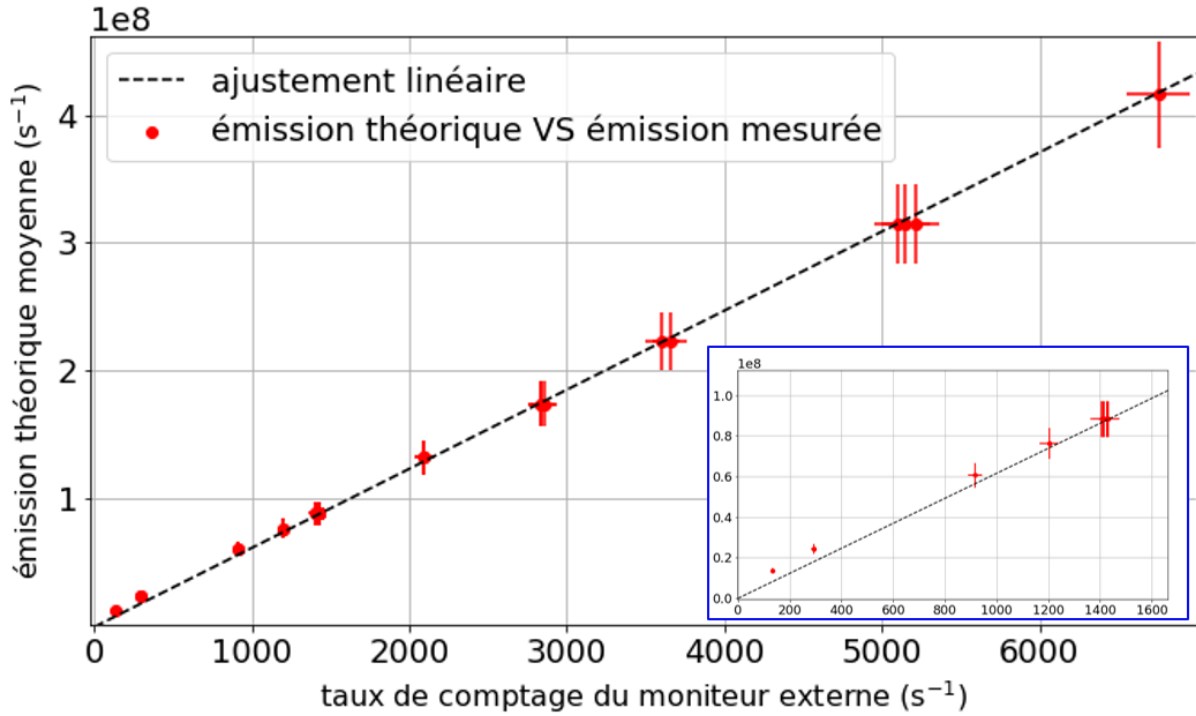


FIGURE 3.15 – Étalonage du moniteur externe pour monitorer l’émission neutronique moyenne lors de la campagne expérimentale de 2021. Un zoom à basse émission est affiché dans le cadran bleu.

Pour cette campagne expérimentale, il faut multiplier le taux de comptage du moniteur externe par $k_{\text{étalonnage}1} = 61.8 \times 10^3$ pour obtenir l’émission moyenne du générateur corrigée de la décroissance du tritium. Ce coefficient d’étalonnage a été obtenu par une régression linéaire (ordonnée nulle à l’origine) à l’aide de la méthode des moindres carrés. Sur l’encadré bleu présentant la même courbe en échelle logarithmique, on observe une surestimation de l’ordre de 20 % pour des émissions faibles.

- Étalonages pour la campagne de mesure de 2022-2023

Notre deuxième campagne de mesure s’est déroulée de novembre 2022 à avril 2023, nous avons donc recalculé le terme de vieillissement de notre source de tritium, qui vaut à présent $k_{\text{décroissance}23} = 0.78$. Le dispositif de mesure n’est plus le même, le générateur a été introduit dans notre fût étalon (présenté en partie 3.4.1). Le moniteur externe est ici plus proche de la source de neutrons et même si du sable et de l’acier font écran, son efficacité de détection est légèrement plus grande que précédemment, comme le montre la figure 3.16 sur une gamme d’émission théoriques plus réduite allant de 0.3×10^7 à $1.8 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$. Cette campagne de mesure vise à limiter le temps mort des détecteurs pour pouvoir comparer simulation et expérience avec un minimum de causes d’incertitude. En guise d’exemple ; à $1.8 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$ le taux de comptage du moniteur est ici légèrement supérieur à 4000 s^{-1} contre un peu plus de 3000 s^{-1} précédemment.

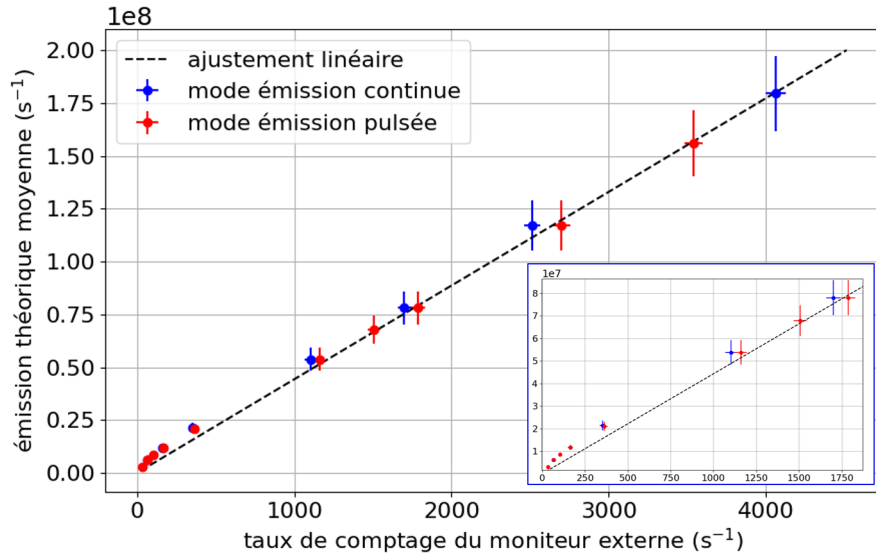


FIGURE 3.16 – Étalonage du moniteur externe pour monitorer l'émission neutronique moyenne lors de la campagne expérimentale de 2022-2023. Un zoom à basse émission est affiché dans le cadran bleu.

Les résultats sont similaires à ceux de la figure 3.15, avec une perte de linéarité seulement à basse émission. Nous avons déterminé un coefficient d'étalonnage $k_{\text{etalonnage2}} = 44.3 \times 10^3$ pour obtenir l'émission moyenne du générateur, corrigée de la décroissance du tritium, en fonction du taux de comptage du moniteur. Cette fois-ci, nous avons réalisé l'étalonnage en mesurant des acquisitions en mode pulsé et en continu. Avec un taux de travail de 10 % (*duty cycle*), l'émission instantanée pendant les impulsions est dix fois plus grande qu'en émission continue, pour les mêmes paramètres d'intensité et de THT, mais l'émission moyenne est similaire et la figure 3.15 montre que l'étalonnage est peu sensible au mode d'émission.

- Influence du retard à l'amorçage sur le taux de travail et l'émission instantanée

Sur la figure 3.13, nous avons pu observer le retard à l'amorçage inhérent au générateur de neutrons. L'existence de ce délai modifie le taux de travail par rapport à celui spécifié par l'utilisateur dans le logiciel de contrôle du générateur. On peut calculer un taux de travail effectif α_{effectif} avec la formule suivante :

$$\alpha_{\text{effectif}} = \frac{T - \Delta_{\text{amorçage}}}{T_r} \quad (3.2)$$

Avec respectivement T et T_r la durée de l'émission neutronique et la période de répétition paramétrées dans le logiciel de contrôle, et $\Delta_{\text{amorçage}}$ le retard à l'amorçage. Dans le cas de la figure 3.13, le rapport cyclique théorique est de 10 % mais le taux de travail effectif est de $(800 - 45) / 8000 = 9.4$ % en raison d'un retard à l'amorçage de $45 \mu\text{s}$ sur une durée d'impulsion théorique de $800 \mu\text{s}$ à une fréquence de répétition de $8000 \mu\text{s}$. L'émission instantanée pendant la bouffée de neutrons du générateur est donc $8000 / 755 = 10.6$ fois plus grande que l'émission moyenne (fixée par les paramètres de consigne, courant cible et haute tension) et non 10 fois plus grande comme attendu, soit un écart significatif de 6 % à prendre en compte dans nos études. La figure 3.17 montre l'évolution du taux de travail effectif calculé à partir de l'équation (3.2) en fonction de la période de répétition programmée. D'après SODERN, le retard à l'amorçage varie avec le courant crête pendant l'impulsion neutronique et sa plage de variation que nous avons pu observer est comprise entre 15 et $50 \mu\text{s}$.

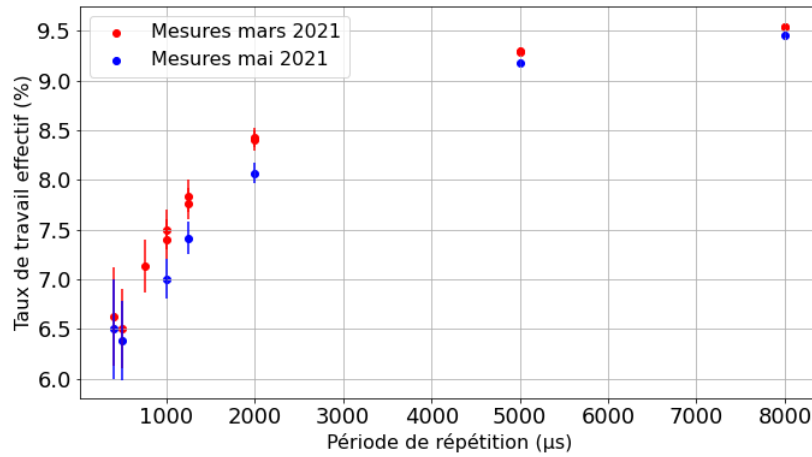


FIGURE 3.17 – Évolution du taux de travail effectif en fonction de la période de répétition de l'émission neutronique, pour la campagne de mesure menée en mars et en mai 2021 [6].

Nous pouvons donc voir sur la figure 3.17 que pour des périodes longues de 8 ms (et donc de longues bouffées d'émission de 800 μs), le taux de travail effectif est relativement proche de la valeur cible de 10 % dans le cas où il n'y aurait pas de retard à l'amorçage. En revanche, pour des émissions courtes ($< 100 \mu\text{s}$), un retard à l'amorçage même court, de 20 μs par exemple, devient substantiel en relatif. Pour nos acquisitions réalisées à 2.5 kHz, avec des salves de neutrons les plus courtes de 40 μs , le retard à l'amorçage observé est de 14 μs et le taux de travail est proche de 6.5 % au lieu des 10 % attendus. Cela signifie que l'émission instantanée est alors 15.4 fois plus grande que l'émission moyenne, au lieu de 10 fois plus grande, soit près de 54 % plus intense que prévue. Nous tiendrons donc compte du taux de travail effectif dans tout ce chapitre.

Remarque : le taux de travail minimum recommandé par SODERN pour le GENIE16 est de 5 %, en dessous, le tube monte en pression (mode ω^2) et risque de ne plus fonctionner. Pour une période de répétition constante de 8000 μs et des intensités de courant cible variant entre 40 et 72 μA , le taux de travail effectif observé fluctue seulement entre 9.5 et 9.75 %.

3.3 Essais à fort taux de comptage pendant le tir du générateur D-T

3.3.1 Avant-Propos

L'objectif premier de cette campagne de mesure était de mesurer l'évolution du temps mort d'une chaîne de mesure « sur étagère » à forte émission neutronique, dont dépend la faisabilité de mesurer la porosité à l'aide du signal rétrodiffusé. Un comptage de l'ordre de 10^6 s^{-1} est visé avec notre détecteur, ainsi qu'un temps mort non paralysable de la chaîne d'acquisition, si possible sans demander un développement d'électronique spécifique à cette application. Nous avons donc essayé de nous placer dans des conditions proches de l'application finale en effectuant un comptage au plus près de chaque impulsion du générateur D-T GENIE16.

Remarque : Les résultats principaux de cette partie 3.3 ont été présentés lors de la conférence NSS 2022 (*Nuclear Science Symposium*), qui s'est tenue du 5 au 12 novembre 2022 à Milan, et ont fait l'objet d'une publication dans les actes de la conférence [6].

Pour rappel, les chaînes de mesures peuvent être soumises à deux comportements de temps mort : paralysable et non-paralysable. Un détecteur verra ses pertes augmenter avec le nombre d'impulsions incidentes, le temps d'occupation du système augmentant avec ces dernières. En revanche, un système non-paralysable conserve le même temps d'occupation quel que soit le nombre d'impulsions incidentes. Il atteint alors un taux de saturation égal à l'inverse du temps mort ($\frac{1}{\tau}$).

3.3.2 Dispositif de mesure

- Géométrie du dispositif

La figure 3.18 est une photographie de notre dispositif de mesure dans la casemate DANAÏDES pendant la campagne expérimentale de 2021. Nous pouvons y voir le générateur de neutrons GENIE16 (encadré en rouge) dans son support mural, sur lequel nous avons accroché une source de ^{252}Cf (encadrée en bleu). Cette dernière est fixée à la hauteur de la source de neutrons du MEN. Nous avons positionné le bloc de détection (encadré en vert) au plus proche du générateur, au contact de son support mural. La photographie a été prise pendant les tests avec l'amplificateur en collection de charge ACH-NA98 (encadré en jaune), qui se trouve au plus près de notre détecteur (< 50 cm) pour limiter les effets capacitifs du câble. Finalement, à environ 180 cm du générateur, se trouve le moniteur externe de la casemate, un compteur 30NH15 nu (encadré en violet), connecté à une électronique de type G-ADSF10.

Le bloc de détection, blindé avec du cadmium, provient d'un autre dispositif [75], il a été conçu pour contenir 7 compteurs à ^3He de type 150NH100 (diamètre 1", 100 cm de longueur active). Les emplacements des détecteurs sont usinés dans du polyéthylène, l'ensemble est blindé par une feuille de cadmium de 2 mm et le bloc est enveloppé dans un fourreau d'acier inoxydable. Dans notre cas, le compteur testé (30NH15 ou 30NH15CS), de même diamètre 1" mais d'une longueur active de seulement 15 cm, est inséré dans un des emplacements (les autres sont laissés vides) et bloqué avec une bague en plastique pour ne pas tomber au fond du dispositif.

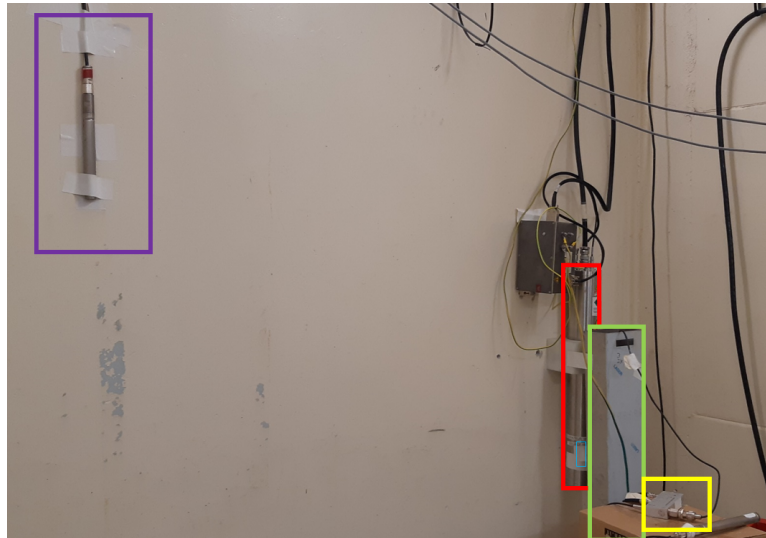


FIGURE 3.18 – Photographie du dispositif de mesure de la campagne de 2021. Le GENIE16 se trouve dans l'encadré rouge, une source ^{252}Cf est collée sur la partie extérieure (en bleu) au niveau de la source du MEN. Le bloc de détection, blindé avec du cadmium est dans le cadre vert, le préamplificateur de charge ACH-NA98 dans celui en jaune. Le moniteur externe (en violet) est accroché au mur à environ 180 cm du générateur.

- Modélisation MCNP

Lors de cette première campagne de mesure, nous avons utilisé le modèle du module d'émission neutronique « MEN GT » présenté en figure 3.14. Le compteur à ^3He est lui de type 30NH15, modélisé conformément à ce qui a été présenté en partie 3.2.2. Le modèle du bloc de détection nous a été fourni par l'équipe travaillant sur le projet MICADO. L'enveloppe extérieure se présente sous la forme d'un parallélépipède rectangle creux semi-débouchant de $1250 \times 158 \times 93 \text{ mm}^3$ en acier inoxydable. Une feuille de 2 mm de cadmium recouvre la surface interne de l'enveloppe. L'intérieur du bloc est rempli par du polyéthylène, à l'exception de sept inserts ronds de diamètre 1" (2.54 cm) prévus pour insérer des compteurs hélium.

La figure 3.18 présente ces différents éléments et une vue de dessus du bloc de détection est ajoutée dans le coins supérieur droit. On peut y voir que les inserts sont répartis en deux rangées et que seulement l'un d'entre eux, sur la rangée la plus proche du générateur, est utilisée pour notre compteur 30NH15. Nous avons essayé de positionner la zone active du compteur en face de la source de neutrons pour maximiser le taux de comptage. La distance entre le centre de la cible du MEN et celui de la zone active de notre détecteur est de 10 cm.

Un *tally* F4 (flux calculé par code MCNP) est utilisé sur la zone active du compteur hélium et ne calcule que les captures $^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$ dans le gaz via l'utilisation d'une carte FM (*tally multiplier*) qui convolue ce flux à la section efficace de cette réaction. La simulation calcule alors le taux de réaction par unité de volume par particule source. En multipliant par le volume de la zone active (67.86 cm^3), nous obtenons l'efficacité de détection totale théorique du détecteur pour les neutrons émis par le générateur, soit environ 0.1 %.

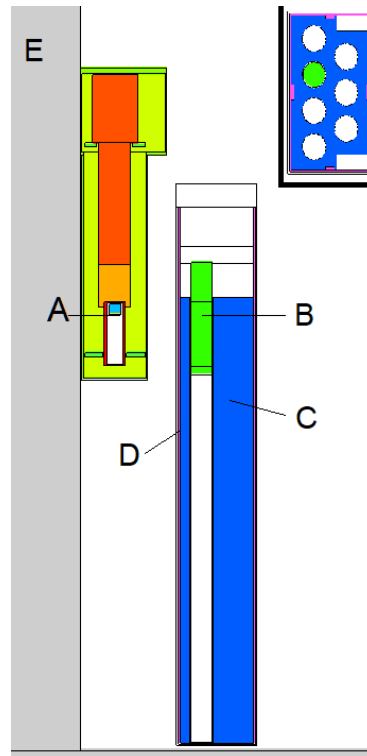


FIGURE 3.19 – Modèle du dispositif expérimental de la campagne de mesure de 2021 réalisé via MCNPX-ViSED [23]. A : source de neutron du MEN (source ponctuelle isotrope dans le modèle numérique) ; B : compteur ^3He ; C : Polyéthylène ; D : blindage cadmium de 2 mm d'épaisseur ; E : murs et sol en béton.

- Méthode de calcul du taux d'impulsions incident ICR

L'étude associée à cette campagne de mesure repose en partie sur la comparaison entre les taux de comptage instantanés incidents, ICR pour *input count rate*, et sortant, OCR pour *output count rate*, de notre chaîne de détection. L' ICR représente le nombre d'impulsions créées dans notre détecteur par capture ${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$, qui est estimé par le produit de l'émission du générateur, évaluée comme décrit précédemment, et de l'efficacité de détection pour les neutrons émis par le GENIE 16 calculée avec MCNP. Dans le cas idéal où notre chaîne de détection ne présenterait aucune perte, nous aurions $ICR = OCR$.

En pratique, une partie des coups sont déjà éliminés par le seuil de coupure bas (électronique et γ) que nous appliquons aux amplificateurs, voir ci-dessous. Nous chercherons ensuite à étudier les pertes additionnelles à fort taux de comptage, notamment par empilements d'impulsions mais aussi par une baisse de la ligne de base qui fait perdre une partie supplémentaire de coups avec le seuil de coupure, en fonction de l'émission instantanée de notre générateur. Nous avons estimé les facteurs de perte dues au seuil bas à faible taux de comptage (701 s^{-1}) à l'aide d'une source ${}^{252}\text{Cf}$ (d'émission $1.87 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$) placée à 50 cm du bloc de détection, en comparant le taux de comptage mesuré avec celui prédit par calcul MCNP. Nous avons trouvé les valeurs suivantes pour les trois chaînes de mesure testées dans la section suivante : $k_{seuilA} = k_{seuilB} = 0.58$ pour celles avec un amplificateur de courant G-ADSF-10 avec un compteur 30NH15 (A) ou 30NH15CS (B) et $k_{seuilC} = 0.74$ pour celle avec un amplificateur à collection de charge ACH-NA98 avec un compteur 30NH15CS.

Nous calculons l' ICR en nous basant sur l'émission instantanée du générateur, qui est estimée comme décrit plus haut grâce au taux de comptage moyen du moniteur externe. Il est important de noter que ce dernier présentait un taux de comptage instantané (pendant les impulsions du générateur en mode pulsé) maximal de $52 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$ lors de toutes nos expérimentations. Cela représente un taux d'empilement de l'ordre de 1 % pour une durée d'impulsion moyenne de 200 ns [44], le moniteur étant connecté à un amplificateur à collection de courant G-ADSF10. On multiplie alors le taux de comptage TC moyen du moniteur par le coefficient d'étalonnage déterminé en 3.2.4 pour obtenir l'émission moyenne du générateur, que l'on divise par le taux de travail effectif $\alpha_{effectif}$ pour obtenir l'émission instantanée moyenne. Pour finir, on multiplie cette dernière par l'efficacité de détection théorique déterminée via MCNP et par le facteur de pertes dû au seuil de coupure, ce qui conduit à ICR :

$$ICR = \frac{TC_{moniteur}^{moyen} \times 61.8 \times 10^3}{\alpha_{effectif}} \times \epsilon_{MCNP} \quad (3.3)$$

Avec $\epsilon_{MCNP} = 1.42 \times 10^{-5} \times 67.9 = 9.64 \times 10^{-4}$ coups par particule source, soit un rendement de détection proche de 0.1 % avec le petit compteur dans la configuration de la figure 3.19, pour les neutrons du générateur.

L' OCR correspond au taux de comptage TC moyen de ce compteur mesuré pendant nos acquisitions, divisé par le taux de travail effectif $\alpha_{effectif}$ pour obtenir également un taux de comptage instantané moyen (nota : $\alpha_{effectif}=1$ en émission continue) :

$$OCR = \frac{TC_{moniteur}^{moyen}}{\alpha_{effectif}} \quad (3.4)$$

3.3.3 Chaîne A : 30NH15 et G-ADSF10

La première chaîne de mesure, que nous avons testée, est constituée d'un compteur 30NH15 standard relié à un amplificateur à collection de courant de type G-ADSF10. C'est la même chaîne de mesure que le moniteur externe de la casemate.

- Mesures en émission continue : effet de l'émission neutronique sur le taux de comptage

Nous avons commencé par réaliser des mesures avec une émission continue. Une source de ^{252}Cf , qui émet 1.9×10^5 neutrons par seconde, était collée sur la paroi du générateur lors de ces essais, à hauteur du compteur à ^3He , et utilisée comme référence pour les essais en mode pulsé (pour contrôler le taux de comptage entre les impulsions du générateur et donc la récupération de la chaîne d'acquisition). Sans le générateur, cette source seule génère un taux de comptage de $3.59 (\pm 0.2) \text{ s}^{-1}$ dans le moniteur externe et de $557 (\pm 3) \text{ s}^{-1}$ dans le compteur étudié. Nous avons retranché ces valeurs à celles mesurées lors de l'émission du générateur en continu, dont les résultats sont donnés dans le tableau 3.2.

TABLEAU 3.2 – Étude des pertes de comptage liées à l'émission neutronique du GENIE16 en mode émission continue pour le chaîne de mesure A (compteur 30NH15 et amplificateur à collection de courant G-ADSF10).

Émission moyenne SODERN (s^{-1})	Taux de comptage du moniteur externe (s^{-1})	Émission moyenne* (s^{-1})	ICR (s^{-1})	OCR (s^{-1})	OCR/ICR
1.15×10^7	103	6.35×10^6	6.12×10^3	6.12×10^3	1
1.82×10^8	2527	1.56×10^8	1.50×10^5	1.32×10^5	0.88
3.58×10^8	5262	3.25×10^8	3.13×10^5	2.21×10^5	0.71

*L'émission instantanée est égale à l'émission moyenne car le taux de travail est de 100 %

A faible émission, le rapport OCR/ICR devrait tendre vers le facteur de pertes dues au seuil électronique $k_{seuilA} = 0.58$. Or, pour une émission neutronique moyenne de $1.15 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$, nous trouvons une valeur de 1. L'explication la plus probable est que l'efficacité de détection ϵ_{MCNP} est sous-évaluée d'un facteur proche de 0.58, induisant une sous-estimation de ICR . Le calcul de l'efficacité totale théorique ϵ_{MCNP} peut en effet être significativement affecté par la façon dont les murs et le sol ont été modélisés, en raison des diffusions neutroniques, l'expérience ayant eu lieu dans un coin de la casemate DANAÏDES. La modélisation des éléments internes du générateur GENIE 16 de type LL est aussi basée sur celle de l'ancien modèle de type GT (voir figure 3.14), ce qui constitue une autre cause possible d'incertitude. Enfin, la distance très faible entre le détecteur et le générateur, visant à maximiser le taux de comptage, augmente l'effet des imprécisions géométriques du modèle. Au regard de la cohérence des résultats expérimentaux observés avec les différentes chaînes de mesure (voir dans les figures suivantes), nous verrons que cette hypothèse de sous-estimation de ϵ_{MCNP} est fort probable.

Nous pouvons voir par ailleurs que la chaîne de mesure A perd significativement en efficacité de comptage pour les deux émissions moyennes supérieures à 10^8 s^{-1} . Pour celle de $3.25 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$, nous sommes alors presque à l'émission maximale que peut produire le générateur (paramètres utilisés $\text{THT} = 110 \text{ kV}$, $I = 75 \mu\text{A}$) et on constate environ 30 % de pertes de comptage liées au temps mort. De plus, dans ce mode continu, nous sommes encore assez éloignés de l'objectif initial du million de coups par seconde visé pour l'application de la sonde neutronique. Il est possible de gagner un ordre de grandeur d'émission instantanée en passant en mode pulsé.

- Mesures en émission pulsée : effet de l'émission neutronique sur le taux de comptage

Nous avons choisi une fréquence de tir de 125 Hz, pour produire des salves de neutrons de $800 \mu\text{s}$ espacées de 8 ms. Six acquisitions de 30 s ont été réalisées pour des émissions neutroniques instantanées allant de 1.9×10^8 à $1.9 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$. La figure 3.20 montre les chronogrammes neutroniques intégrés sur 30 s du cycle d'émission à 125 Hz ce qui correspond à 3750 bouffées de neutrons émises par le générateur.

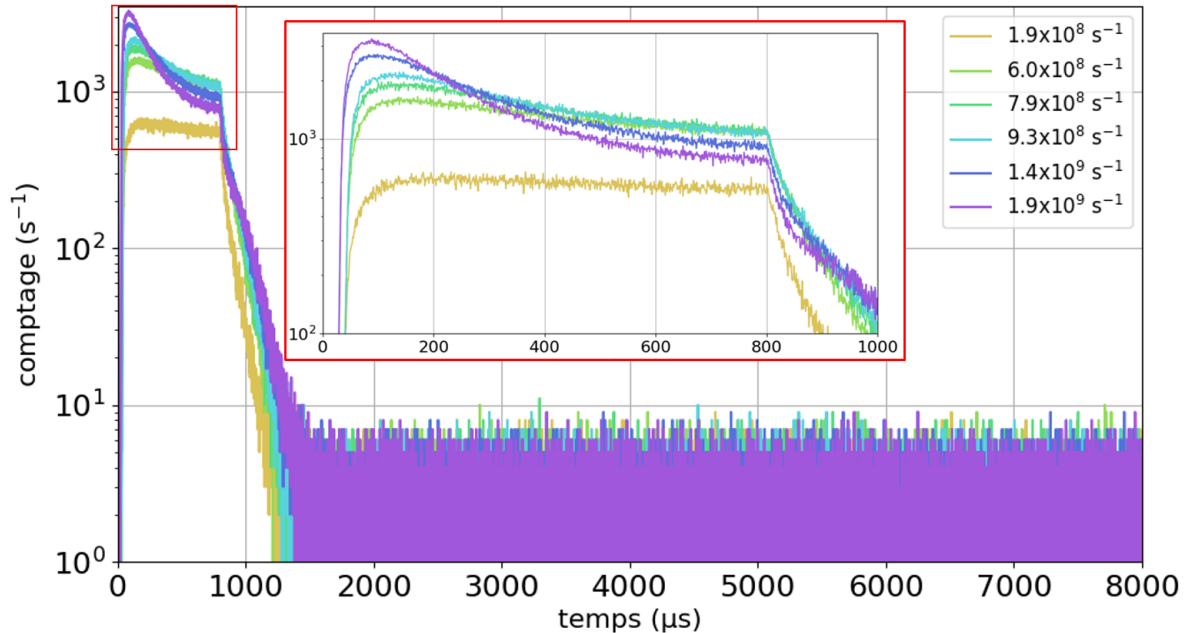


FIGURE 3.20 – Chronogrammes neutroniques mesurés par la chaîne A (compteur 30NH15 et amplificateur à collection de courant G-ADSF10) pendant 30 s à 125 Hz pour différentes émissions instantanées avec des bouffées de neutrons de $800 \mu\text{s}$ espacées de 8 ms.

Sur la figure 3.20 nous voyons que les chronogrammes neutroniques présentent deux zones distinctes. Entre 0 et $800 \mu\text{s}$ nous observons la période où le générateur tire, le signal mesuré est alors très intense. Le signal décroît ensuite très rapidement (environ $400 \mu\text{s}$) pour se stabiliser jusqu'à la fin du cycle. Cette zone d'inter-pulse correspond à la mesure de la source ^{252}Cf accrochée au générateur, on voit que le signal est bruité car la statistique associée est bien moins importante que lors du tir.

En observant la zone correspondant au tir du générateur (encadrée en rouge), on se rend compte que les signaux des différentes émissions instantanées sont plus ou moins saturés. Le signal jaune, qui correspond à une émission instantanée de $1.9 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$, est le moins déformé de tous mais on pressent déjà que le maximum se trouve vers le début du tir et que le signal décroît lentement jusqu'à la fin de celui-ci. Il ressemble néanmoins au signal attendu avec l'établissement d'un plateau au bout d'environ $100 \mu\text{s}$, qui dure jusqu'à l'arrêt du tir du générateur. Si la durée de l'émission est suffisamment grande au regard des constantes de thermalisation du spectre incident, ce plateau se forme après la stabilisation entre les pertes (absorptions des neutrons dans le bloc de détection et fuites hors de ce dernier) et l'alimentation due à l'émission neutronique. Pour les courbes correspondant à des émissions plus élevées, la décroissance pressentie devient de plus en plus marquée et les amplitudes maximales ne suivent pas de façon linéaire l'émission neutronique.

Afin de mieux se représenter l'effet du temps mort sur les signaux mesurés, nous pouvons représenter les mêmes données en les normalisant par le comptage du moniteur externe dans chaque acquisition, ce qui revient à comparer le signal pour un même nombre de neutrons émis, voir figure 3.21.

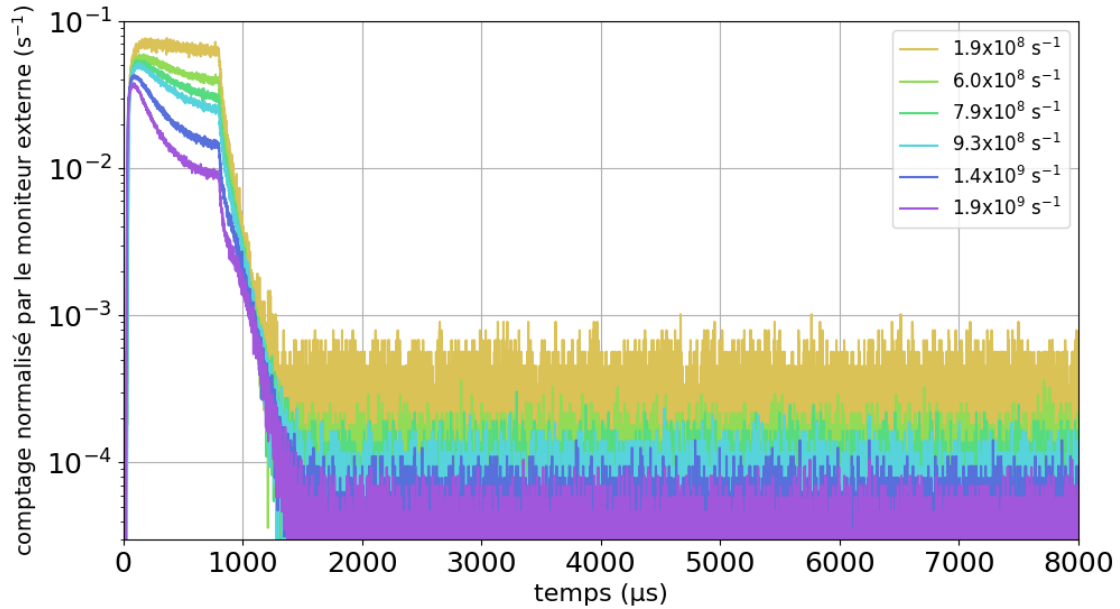


FIGURE 3.21 – Chronogrammes neutroniques mesurés par la chaîne A (compteur 30NH15 et amplificateur à collection de courant G-ADSF10) sur 30 secondes à 125 Hz pour différentes émissions instantanées, normalisés par le moniteur externe. Emissions pulsées de 800 μs espacées de 8 ms.

En l'absence de temps mort, les acquisitions correspondant au tir du générateur devraient se superposer, ce qui n'est pas le cas, puis se séparer dans la deuxième partie, comme nous le voyons cette fois de façon logique, car l'émission de la source de ^{252}Cf est constante mais également normalisée par le moniteur externe (sur la figure 3.20 elles étaient bien superposées même si les fluctuations statistiques empêchent de le constater). Cette représentation nous permet non seulement de voir le décrochement du signal lors des impulsions du générateur mais aussi que l'électronique ne récupère pas immédiatement après, le signal correspondant aux plus hautes émissions (1.9 et $1.4 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$) présentant un défaut de comptage significatif entre 800 et 1000 μs .

On peut recouper les résultats du tableau 3.2 et les données des figures 3.20 et 3.21 pour voir le comportement de la chaîne A en fonction de l'émission instantanée. La figure 3.22 montre ainsi l'évolution des taux de comptages sortant de la chaîne A pour des taux instantanés d'impulsions produites dans le compteur ^3He (ICR) allant de quelques milliers à plus de trois millions par seconde. Il y a une zone de recouvrement entre les acquisitions en mode d'émission continue (en moyenne 10 fois moins intenses pour la même émission moyenne) et en mode pulsé. Pour tenir compte du biais observé plus haut en émission continue (lié à la sous-estimation de ϵ_{MCNP}) nous avons divisé les ICR du tableau 3.2 ainsi que ceux calculés à partir de la figure 3.21 par le facteur 0.58 pour obtenir les points de la figure 3.21. L'ensemble des acquisitions forme une courbe de temps mort présentant un maximum autour d'un ICR de $1.9 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$, les pertes de comptage liées au temps mort représentent alors environ 60 % du nombre d'impulsions entrantes dans la chaîne de mesure A. Cette électronique n'est donc *a priori* pas la plus adaptée pour faire une mesure de porosité hydrogène en puits de forage en se servant des neutrons rétrodiffusés juste après le tir du générateur.

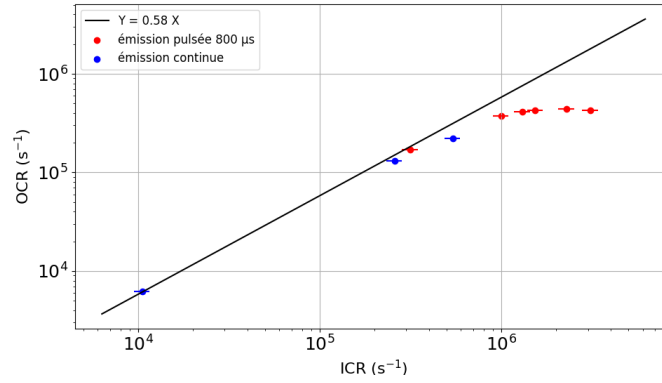


FIGURE 3.22 – Évolution des taux de comptages sortants (OCR) de la chaîne A (compteur 30NH15 et amplificateur à collection de courant G-ADSF10) en fonction du taux instantané d’impulsions incidentes produites dans le compteur ^3He , pour des émissions en mode continu (en bleu) et en mode pulsé (en rouge) à 125 Hz, avec une durée d’impulsion de 800 μs

- Mesures en émission pulsée : effet de la durée d’émission sur le taux de comptage

En observant l’évolution du comptage au cours de l’émission du générateur (figure 3.21), on remarque que le temps mort augmente au cours du tir. Il est donc potentiellement plus avantageux d’utiliser des salves de neutrons plus courtes mais plus fréquentes. Nous avons donc étudié l’effet de la longueur d’impulsion sur le taux de comptage mesuré pour une émission instantanée de 10^9 s^{-1} pendant la bouffée de neutrons. La figure 3.23 montre le comptage moyen (sur 30 secondes) ramené à une salve unique de neutrons après avoir divisé le chronogramme par la fréquence pour pouvoir comparer l’allure du signal pendant le tir. En effet, pour raccourcir les impulsions, on augmente la fréquence alors que le taux de travail et l’émission moyenne restent fixes, respectivement à 10 % et 10^8 s^{-1} . Ainsi, le signal bleu correspondant à un tir de 100 μs répété chaque milliseconde (à 1 kHz) présente huit bouffées de neutrons pendant un seul tir du signal rouge de 800 μs (à 125 Hz) étudié précédemment. Le taux de travail effectif varie entre 9.5 % et 7.5 % pour des tirs allant respectivement de 800 μs à 100 μs . L’émission instantanée est donc légèrement plus forte pour les salves les plus courtes.

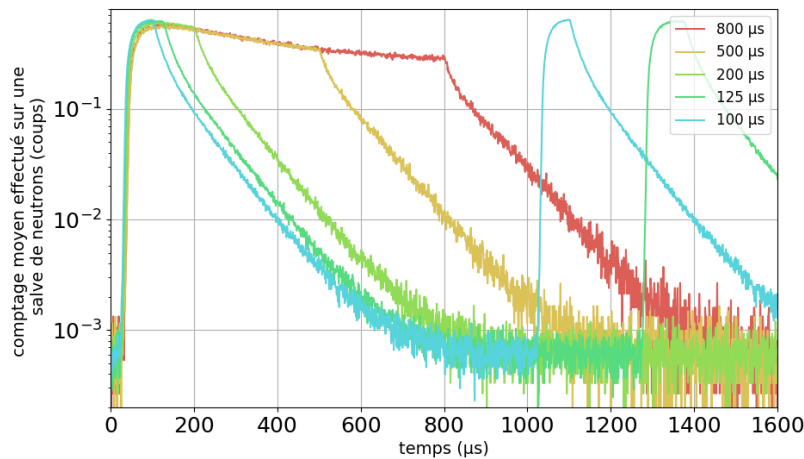


FIGURE 3.23 – Chronogramme neutronique représentant la moyenne d’une salve unique du générateur pour différentes durées de tir mesuré par la chaîne A (compteur 30NH15 et amplificateur à collection de courant G-ADSF10), pour une émission moyenne de $9.3 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$. Le motif des signaux en bleu et en vert est répété pour illustrer la répétition plus fréquente de ces modes d’émission (la fréquence de répétition vaut 10 fois la durée de tir indiquée dans la légende du graphique).

On peut voir sur la figure 3.23 de légères différences de retard à l’amorçage, allant de 25 μs pour le tir de 100 μs à 37 μs celui de 800 μs , et de faibles variations de l’amplitude maximale. La forme des signaux est ainsi similaire au début du tir, quelle que soit la longueur de ce dernier. Ce résultat montre que la durée des bouffées d’émission neutronique affecte la chaîne de mesure significativement et que des impulsions plus courtes, répétées plus souvent, permettront de minimiser les pertes de comptage.

Le tableau 3.3 valide cette hypothèse, et montre que pour une émission neutronique moyenne de $9.3 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$, la séquence de tir de 100 μs permet de diviser par 2.5 les pertes de comptage de la chaîne A par rapport à celle de 800 μs . Pour la sonde neutronique, une durée d’émission de 50 μs est envisagée, avec un générateur spécifique développé par SODERN, ce qui signifie des pertes de comptages inférieures à 25 % pour un ICR de $1.1 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$. En optimisant l’autre élément de la chaîne, le compteur, la mesure de porosité hydrogène par mesure de neutrons rétrodiffusés semble donc *a priori* réalisable en pratique.

TABLEAU 3.3 – Étude des pertes de comptage liées à l’émission neutronique du GENIE16 en mode pulsée de la chaîne de mesure A (compteur 30NH15 et amplificateur à collection de courant G-ADSF10), pour différentes durées de tir à une émission moyenne de $9.2 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$.

Durée de l’émission (μs)	ICR (s^{-1})	OCR (s^{-1})	OCR/ICR^*
800	8.9×10^5	4.3×10^5	0.48
500	9.2×10^5	5.0×10^5	0.55
200	1.0×10^6	7.1×10^5	0.71
125	1.1×10^6	8.4×10^5	0.76
100	1.1×10^6	9.0×10^5	0.79

*Par souci d’homogénéité avec le tableau 3.2, l’ ICR est calculé grâce à l’équation 3.4 sans diviser par 0.58 comme sur la figure 3.22.

3.3.4 Chaîne B : 30NH15CS et G-ADSF10

Nous avons donc remplacé le compteur 30NH15 par un modèle 30NH15CS optimisé pour fonctionner avec un amplificateur de type G-ADSF10 et nous avons mené la même étude qu’avec la chaîne de mesure précédente. Lors de nos premières acquisitions ; nous nous sommes rendu compte des meilleures performances et avons décidé d’augmenter le nombre de points de mesures pour approfondir nos résultats.

- Mesures en émission continue : effet de l’émission neutronique sur le taux de comptage

Nous avons réalisé 6 mesures en mode continu pour des émissions moyennes allant de $1.15 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ à $3.58 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$. Les résultats sont présentés dans le tableau 3.4.

TABLEAU 3.4 – Étude des pertes de comptage liées à l’émission neutronique du GENIE16 en mode émission continue pour la chaîne de mesure B (compteur 30NH15CS et amplificateur à collection de courant G-ADSF10).

Émission moyenne SODERN (s^{-1})	Taux de comptage du moniteur externe (s^{-1})	Émission moyenne* (s^{-1})	ICR (s^{-1})	OCR (s^{-1})	OCR/ICR
1.15×10^7	103	6.35×10^6	6.12×10^3	6.18×10^3	1
3.37×10^7	418	2.58×10^7	2.49×10^4	2.53×10^4	1
6.74×10^7	812	5.02×10^7	4.84×10^4	4.89×10^4	1
1.03×10^8	1369	8.46×10^7	8.16×10^4	8.03×10^4	0.99
1.82×10^8	2527	1.56×10^8	1.51×10^5	1.49×10^5	0.99
3.58×10^8	5321	3.29×10^8	3.17×10^5	2.81×10^5	0.88

*L’émission instantanée est égale à l’émission moyenne car le taux de travail est de 100 %

Nous constatons à nouveau que le ratio OCR/ICR tends vers 1 quand le taux de comptage diminue, alors que k_{seuilB} vaut également 0.58, ce qui est toujours dû à la sous-estimation de ϵ_{MCNP} . Nous pouvons voir que la chaîne de mesure B ne commence à perdre significativement en efficacité de comptage qu'à partir d'une émission moyenne de $3.29 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$, avec cependant des pertes limitées à 12 %, contre 29 % pour la chaîne A. Dès ces premières acquisitions, nous voyons une amélioration des performances de la chaîne.

- Mesures en émission pulsée : effet de l'émission neutronique sur le taux de comptage

Huit acquisitions de 30 s ont été réalisées pour des émissions neutroniques instantanées allant de 8.8×10^7 à $2.4 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$. La figure 3.24 représente les chronogrammes neutroniques intégrés sur 30 s du cycle d'émission à 125 Hz, normalisés par l'intégrale du moniteur externe à l'instar de la figure 3.21.

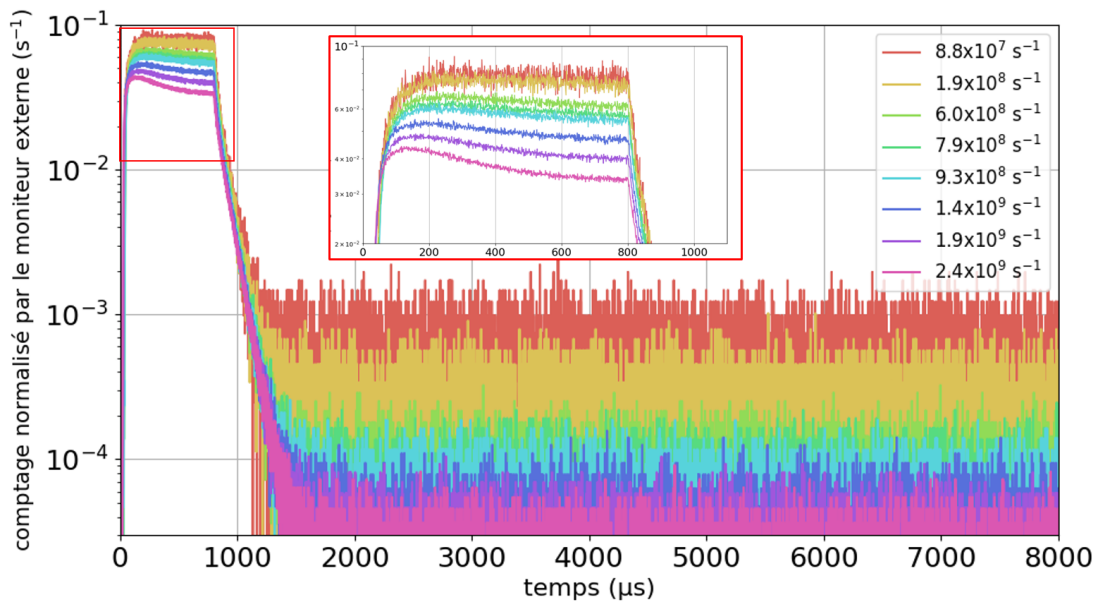


FIGURE 3.24 – Chronogrammes neutroniques mesurés par la chaîne B (compteur 30NH15CS et amplificateur à collection de courant G-ADSF10) sur 30 secondes à 125 Hz pour différentes émissions instantanées, normalisés par le moniteur externe. Emissions pulsées de $800 \mu\text{s}$ espacées de 8 ms.

On peut voir sur la figure 3.24 que l'écart entre les signaux correspondants au tir du générateur est moins marqué que sur la figure 3.21, alors que la gamme d'émissions neutroniques étudiée est plus importante. Dans l'encadré rouge, on voit également que les pertes de comptage au sein d'un tir sont moindres.

En regroupant les données du tableau 3.4 et de la figure 3.24, on peut établir la figure 3.25 montrant l'évolution des taux de comptage sortant de la chaîne B pour des taux d'impulsions incidentes instantanées produites dans le compteur ^3He allant de quelques milliers à plus de 4 millions par seconde. Nous avons également divisé les ICR du tableau 3.4 ainsi que ceux calculés à partir de la figure 3.24 par 0.58 pour tenir compte du biais sur ϵ_{MCNP} et obtenir les points de la figure 3.25. A faible taux de comptage, les points s'alignent sur la droite $Y = 0.58 X$ représentée en noir, aux incertitudes près (représentées à 1σ). Elles sont statistiques en ordonnée (taux de comptage mesurés) et confondues dans les marqueurs. En revanche, l'incertitude dominante en abscisse est celle sur l'émission neutronique, qui repose sur l'étalonnage réalisé par SODERN à 10 % près (voir partie 3.2.4).

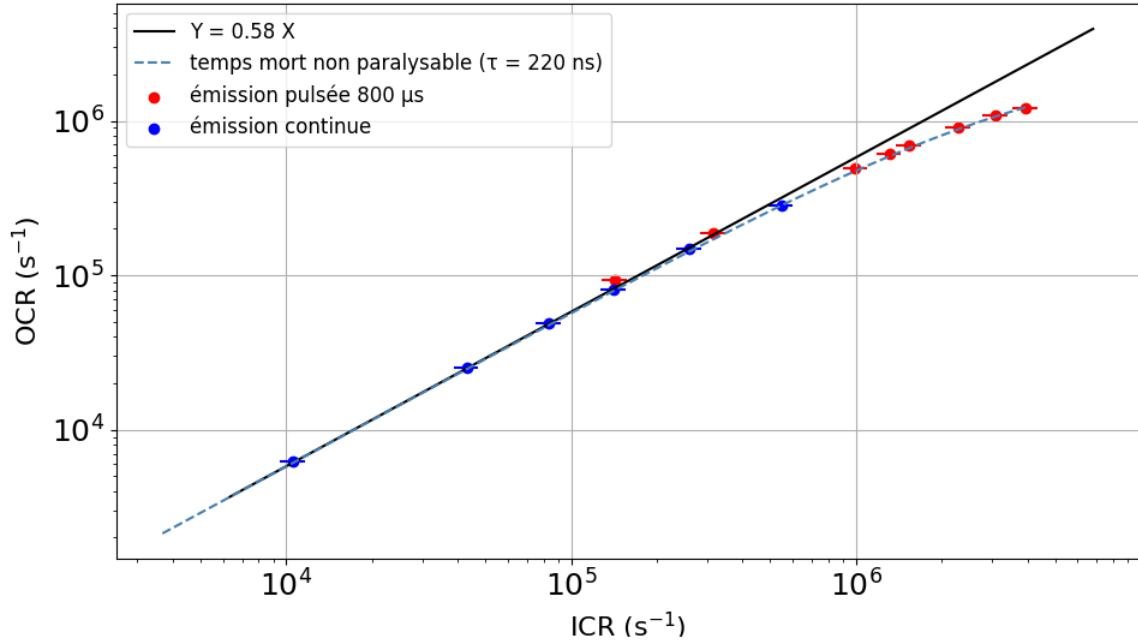


FIGURE 3.25 – Évolution des taux de comptage sortants (OCR) de la chaîne B (compteur 30NH15CS et amplificateur à collection de courant G-ADSF10) en fonction du taux instantané d’impulsions incidentes dans le compteur ${}^3\text{He}$, pour des émissions en mode continu (en bleu) et pulsé (en rouge) à 125 Hz, soit des tirs de 800 μs répétés toutes les 8 ms.

Cette courbe montre un temps mort de type non paralysable dont le comportement théorique est donné par l’équation (3.5) [39] et qui est représentée par la courbe en pointillés dans la figure 3.25. De façon à prendre en compte les pertes de comptage liées au seuil de coupure électronique, OCR est multiplié par $k_{seuilB} = 0.58$.

$$OCR = 0.58 \times \frac{ICR}{1 + ICR \times \tau} \quad (3.5)$$

Avec τ le temps d’occupation du système pour le traitement d’une impulsion, ici $\tau = 220$ ns pour des émissions longues de 800 μs . Cela signifie que si le comportement de la chaîne restait non paralysable à plus haute émission neutronique, OCR devrait alors converger vers $k_{seuilB} \times 1/\tau$, soit un taux de comptage maximum de $2.6 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$. Nous ne sommes cependant pas en mesure de vérifier cette hypothèse avec notre générateur de neutrons GENIE16, car il faudrait pouvoir augmenter encore d’un facteur 20 l’émission instantanée.

- Mesures en émission pulsée : effet de la durée d’émission sur le taux de comptage

Nous avons vu avec la chaîne A que la durée d’impulsion avait un effet important sur le taux de comptage, en diminuant les pertes liées au temps mort. Nous avons mené l’étude jusqu’à une fréquence de tir de 2.5 kHz, pour des durées d’émission de 40 μs . La figure 3.26 représente le comptage moyen (sur 30 secondes) réalisé pour une salve unique de neutrons pour différentes durées d’émission.

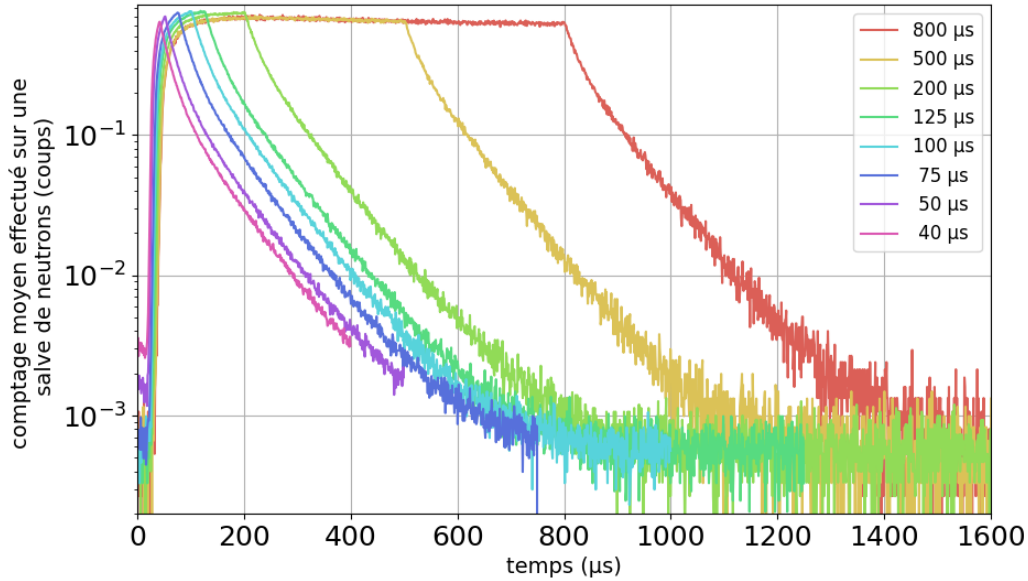


FIGURE 3.26 – Chronogramme neutronique représentant la moyenne d’une salve unique du générateur pour différentes durées de tir mesuré par la chaîne B (compteur 30NH15CS et amplificateur à collection de courant G-ADSF10), pour une émission moyenne de $9.2 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$.

Comme pour la figure 3.23, on observe des différences de retard à l’amorçage allant de $20 \mu\text{s}$ pour le tir de $40 \mu\text{s}$ à $38 \mu\text{s}$ pour celui de $800 \mu\text{s}$. Cependant, ces $20 \mu\text{s}$ pour le tir de $40 \mu\text{s}$ divisent par deux sa longueur réelle, le taux de travail effectif s’en trouve réduit à 5 %, ce qui est notre limite d’utilisation. Pour une même émission moyenne de $9.2 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$, nous avons une émission instantanée presque deux fois plus intense pour une durée de $40 \mu\text{s}$ ($1.7 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$) que pour la durée préalablement étudiée de $800 \mu\text{s}$ ($9.2 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$). Il y a donc une compétition entre les pertes progressives de comptage au cours d’un même tir, comme on peut le voir sur la figure 3.23, et l’augmentation du temps mort liée à une émission instantanée plus intense.

Dans le tableau 3.5 nous avons regroupé les *ICR* et *OCR* des différentes courbes tracées sur la figure 3.26. La tendance observée dans le tableau 3.3 se confirme, c’est-à-dire que les pertes de comptage se réduisent avec la réduction de la durée des impulsions et pour des tirs de $50 \mu\text{s}$ ou moins, elles passent sous la barre des 5 %.

TABLEAU 3.5 – Étude des pertes de comptage liées à l’émission neutronique du GENIE16 en mode pulsée de la chaîne de mesure B (compteur 30NH15CS et amplificateur à collection de courant G-ADSF10), pour différentes durées de tir à une émission moyenne de $9.2 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$.

Durée de l’émission (μs)	<i>ICR</i> (s^{-1})	<i>OCR</i> (s^{-1})	<i>OCR/ICR</i> *
800	8.88×10^5	6.85×10^5	0.77
500	9.21×10^5	7.24×10^5	0.79
200	1.02×10^6	8.76×10^5	0.86
125	1.14×10^6	1.01×10^6	0.89
100	1.21×10^6	1.09×10^6	0.90
75	1.32×10^6	1.22×10^6	0.92
50	1.54×10^6	1.46×10^6	0.95
40	1.68×10^6	1.61×10^6	0.96

*Par souci d’homogénéité avec le tableau 3.4, l’*ICR* est calculé grâce à l’équation (3.3) sans diviser par 0.58 comme sur la figure 3.25.

- Mesures en émission pulsée à émission instantanée maximale

Nous avons vu qu'en faisant fonctionner le générateur à 2 kHz pour produire des tirs de 50 μs , nous diminuons les pertes de comptage des chaînes A et B. Une dernière étude sur cette dernière chaîne B consiste à atteindre une émission instantanée maximale. Pour ce faire nous avons presque poussé le générateur à la limite de ses capacités (THT=120 kV, $I = 75 \mu\text{A}$) et nous avons diminué le taux de travail théorique en passant progressivement de 10 % à 7 %. La figure 3.27 représente l'émission neutronique pour une salve unique de neutrons de 50 μs moyennée sur 60 s d'acquisition. La fin de la période de répétition varie entre 500 et 710 μs car le taux de travail a été progressivement diminué jusqu'à une valeur théorique de 7 %.

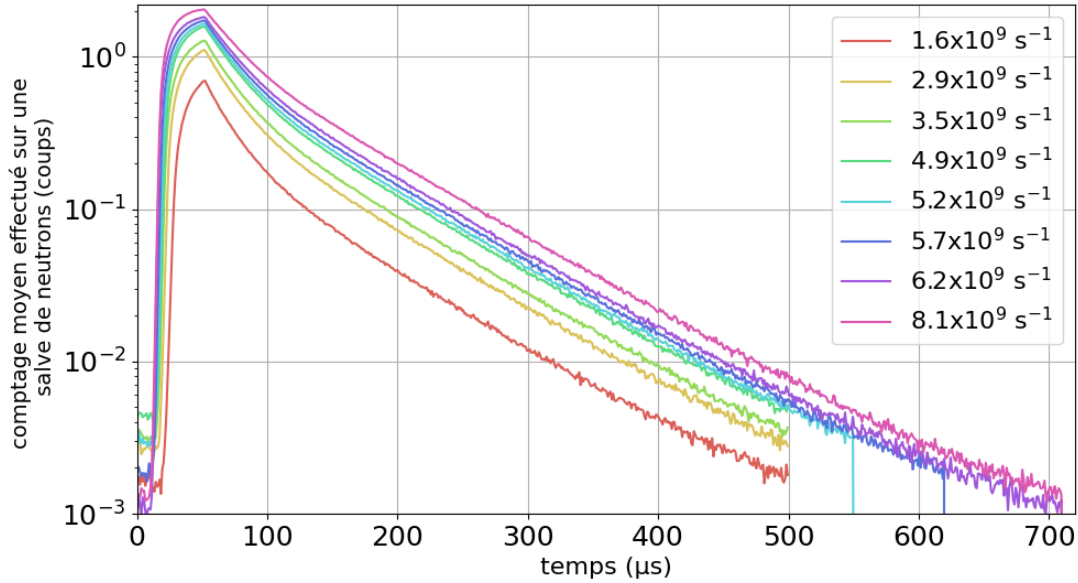


FIGURE 3.27 – Chronogramme neutronique représentant la moyenne d'une salve unique de 50 μs du générateur mesuré par la chaîne B (compteur 30NH15CS et amplificateur à collection de courant G-ADSF10) pour différentes émissions instantanées allant de $1.6 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$ à $8.1 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$

Nous voyons donc sur la figure 3.27 la réponse de la chaîne B à des émissions instantanées approchant 10^{10} s^{-1} , comme celle utilisée en simulation numérique pour l'étude de la méthode de mesure présentée en chapitre 2 (émission moyenne de 10^8 s^{-1} et taux de travail de 1 %). Les taux de travail effectifs utilisés ici pour nos essais expérimentaux descendent à un minimum de 5.1 %, pour les deux émissions instantanées les plus importantes. Nous pouvons voir que le maximum de pertes survient à la fin du tir, les chronogrammes neutroniques saturant progressivement avec l'augmentation de l'émission instantanée. A l'inverse, dans la zone inter-impulsions, les signaux sont bien parallèles entre eux, indiquant par la même occasion qu'ils sont peu affectés par des pertes de comptage liées au temps mort.

Nous pouvons combiner les données de cette figure 3.27 avec la figure 3.25 pour représenter les pertes liées au temps mort en fonction de l'ICR (divisée par 0.58) et de la longueur de tir en mode pulsé. Nous voyons alors sur la figure 3.28 que les acquisitions réalisées avec des salves de 50 μs suivent leur propre courbe de temps mort non paralysable. L'ajustement est alors réalisé à partir de l'équation (3.5). La constante de temps mort associée à cette série d'acquisitions est ici de seulement 50 ns. Ce résultat est particulièrement important, car il signifie que la chaîne de mesure répond différemment en fonction du profil d'émission auquel elle est soumise.

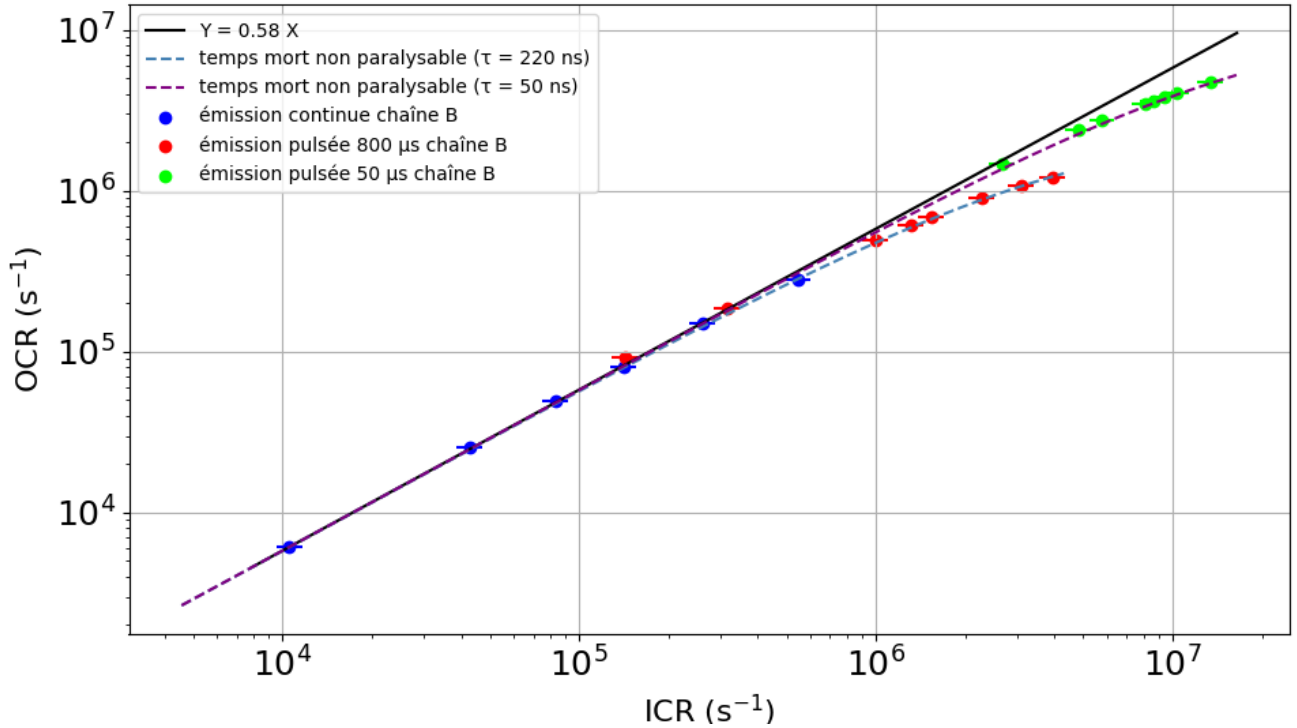


FIGURE 3.28 – Évolution des taux de comptages sortants (OCR) de la chaîne B (compteur 30NH15CS et amplificateur à collection de courant G-ADSF10) en fonction du taux instantané d’impulsions incidentes produites dans le compteur ^3He , pour des émissions en mode continu (en bleu), pulsé à 125 Hz avec des tirs de 800 μs (en rouge) et pulsé à 2 kHz avec des impulsions de 50 μs (en vert).

3.3.5 Chaîne C : 30NH15CS et ACH-NA98

Le compteur 30NH15CS a présenté de meilleures performances que la version 30NH15 standard. Nous avons vu avec la chaîne B qu’il était possible de réduire significativement le temps mort de la chaîne avec des émissions neutroniques plus courtes. Nous remplaçons à présent l’amplificateur en mode courant G-ADSF10 par un ACH-NA98 afin de mesurer ses performances en collection de charge.

- Mesures en émission continue : effet de l’émission neutronique sur le taux de comptage

Nous avons réalisé 8 mesures pour les tirs du générateur en mode émission continue, pour des émissions moyennes allant de 1.53×10^7 s^{-1} à 3.58×10^8 s^{-1} . Les résultats sont présentés dans le tableau 3.6. La source seule de ^{252}Cf génère ici aussi un taux de comptage de 3.59 s^{-1} dans le moniteur externe (comme avec les chaînes A et B) mais de 676 s^{-1} dans le compteur étudié au sein du bloc de détection, soit nettement plus que les 557 s^{-1} des chaînes précédentes, la collection de charge permettant une meilleure séparation entre le bruit électronique et le signal neutronique, et donc de placer un seuil de coupure engendrant moins de pertes.

TABLEAU 3.6 – Étude des pertes de comptage liées à l'émission neutronique du GENIE16 en mode émission continue pour la chaîne de mesure C (compteur 30NH15CS et et préamplificateur de charge ACH-NA98).

Émission moyenne SODERN (s^{-1})	Taux de comptage du moniteur externe (s^{-1})	Émission moyenne* (s^{-1})	ICR (s^{-1})	OCR (s^{-1})	OCR/ICR	$\frac{OCR \times 0.58}{ICR}$
1.53×10^7	128	7.9×10^6	7.61×10^3	9.53×10^3	1.25	0.73
2.75×10^7	237	1.47×10^7	1.41×10^4	1.78×10^4	1.26	0.73
3.37×10^7	668	1.76×10^7	1.7×10^4	2.11×10^4	1.24	0.72
6.74×10^7	1291	4.13×10^7	3.98×10^4	4.44×10^4	1.12	0.65
1.00×10^8	1291	7.98×10^7	7.69×10^4	7.10×10^4	0.92	0.54
1.82×10^8	2144	1.33×10^8	1.28×10^5	1.00×10^5	0.79	0.46
2.55×10^8	3489	2.16×10^8	2.08×10^5	1.26×10^5	0.61	0.35
3.58×10^8	4220	2.61×10^8	2.51×10^5	1.36×10^5	0.54	0.31

*L'émission instantanée est égale à l'émission moyenne car le taux de travail est de 100 %

Le rapport OCR/ICR devrait tendre vers le facteur de pertes électroniques $k_{seuilC} = 0.74$ à faible taux de comptage. Or, pour une émission neutronique moyenne de $1.53 \times 10^7 s^{-1}$, nous trouvons une valeur aberrante de 1.25 en raison du biais sur ϵ_{MCNP} mentionné précédemment pour les chaînes A et B. Lorsque nous corrigeons ICR en le divisant par 0.58 pour corriger ce biais, nous retrouvons bien un ratio OCR/ICR proche de $k_{seuilC} = 0.74$. Comme attendu, l'amplificateur ACH-NA98 à collection de charge permet d'avoir un meilleur taux de comptage que le G-ADSF10 à collection de courant, à faible émission. En revanche, la longueur du signal en sortie de cet amplificateur étant presque 10 fois plus importante, comme le montrent les figures 3.11 et 3.9. On s'attend donc, à une constante d'occupation pour le traitement d'une impulsion (τ dans l'équation 3.5) environ 10 fois plus grande, ce qui induit un temps mort beaucoup plus élevé à fort taux de comptage.

- Mesures en émission pulsée : effet de l'émission neutronique sur le taux de comptage

Huit acquisitions de 30 s ont été réalisées pour des émissions neutroniques instantanées allant de 8.4×10^7 à $2.3 \times 10^9 s^{-1}$. La figure 3.29 représente les chronogrammes neutroniques intégrés sur 30 s du cycle d'émission à 125 Hz, normalisés par l'intégrale du moniteur externe à l'instar des figures 3.21 et 3.24. De façon qualitative, les pertes de comptage au sein d'un tir semblent absentes car les signaux ont une allure semblable au profil carré de la bouffée d'émission neutronique. Cependant, l'écart entre les valeurs extrêmes d'émission instantanée est ici d'environ une décade alors qu'il était inférieur à un facteur 3 avec le même compteur, mais couplé à l'amplificateur G-ADSF10 (figure 3.24). Une analyse plus poussée montre, en réalité, que le signal sature plus vite, dès le front de montée avant l'établissement du plateau d'émission neutronique. Nous pouvons le voir dans l'encadré de la figure, avec une forme d'établissement non physique en comparaison avec les courbes à faible émission ou avec l'allure théorique (figure 3.43). On note également l'évolution non physique du signal juste après la fin du tir à forte émission, avec une inflexion traduisant la persistance d'une saturation pendant quelques centaines de microsecondes, en comparaison avec le signal à faible émission.

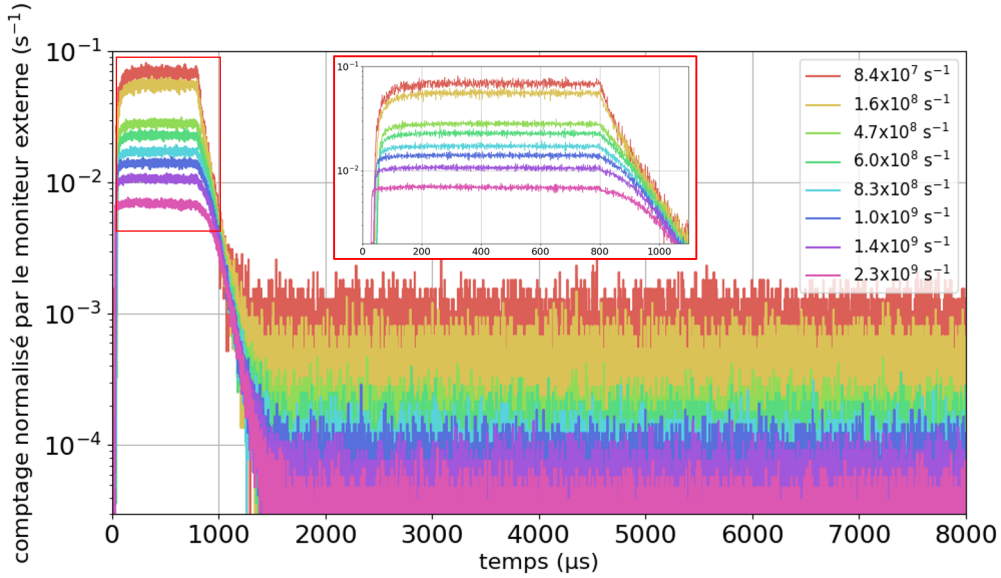


FIGURE 3.29 – Chronogrammes neutroniques mesurés par la chaîne C (compteur 30NH15CS et préamplificateur de charge ACH-NA98) sur 30 secondes à 125 Hz pour différentes émissions instantanées, normalisés par le moniteur externe. Émissions pulsées de 800 μs espacées de 8 ms.

En regroupant les données du tableau 3.6 et de la figure 3.29 on peut produire la courbe des pertes de comptage représentée en figure 3.25. Cela correspond à l'évolution du taux de comptage sortant de la chaîne C en fonction du taux instantané d'impulsions entrantes (produites dans le compteur ^3He), allant de quelques milliers, à plus de 4 millions par seconde. Nous avons également divisé par 0.58 les ICR du tableau 3.6 ainsi que ceux calculés à partir de la figure 3.29 pour obtenir les points de la figure 3.30, afin de tenir compte du biais évoqué plus haut sur ϵ_{MCNP} . Les points s'alignent sur la droite $Y = 0.74 X$ représentée en noir, aux incertitudes près (représentées à 1σ), conformément au facteur de pertes par seuillage électronique de l'amplificateur à collection de charge ACH-NA98.

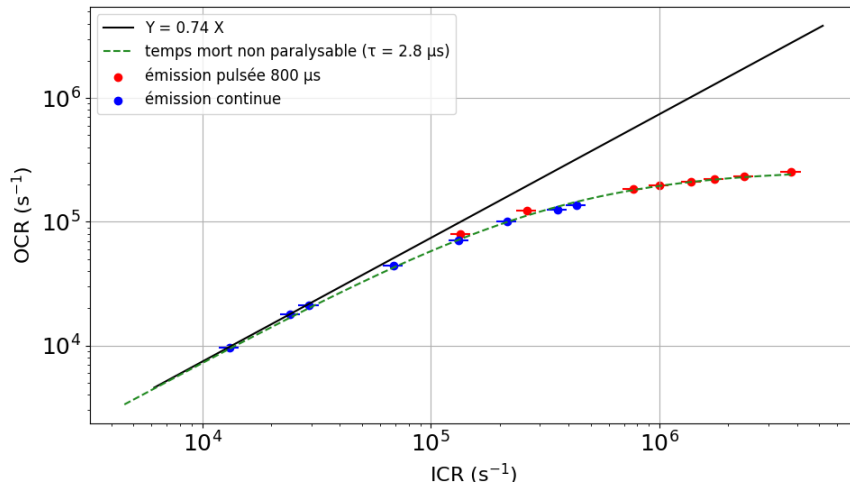


FIGURE 3.30 – Évolution des taux de comptage sortants (OCR) de la chaîne C (compteur 30NH15CS et préamplificateur de charge ACH-NA98) en fonction du taux instantané d'impulsions incidentes dans le compteur ^3He , pour des émissions en mode continu (en bleu), en mode pulsé à 125 Hz avec une durée de tir de 800 μs (en rouge).

Sur la figure 3.30 nous voyons que les acquisitions réalisées avec des salves de $800 \mu\text{s}$ suivent une courbe de temps mort de type non paralysable. Nous avons pu réaliser un ajustement à l'aide de l'équation (3.5) et la constante de temps mort (durée moyenne apparente de traitement d'une impulsion) associée à cette série d'acquisition est cette fois de $2.8 \mu\text{s}$ alors que la chaîne B, soumise aux mêmes profils d'émission neutronique, présentait une constante de 220 ns comme présenté sur les figures 3.25 et 3.28, soit plus d'une décade d'écart. Ce résultat est cohérent avec les longueurs d'impulsions respectives en sortie analogique des deux amplificateurs, respectivement de 1 à $2 \mu\text{s}$ (ACH-NA98) et de 100 à 200 ns (G-ADSF10), selon l'amplitude des impulsions.

- Mesures en émission pulsée : effet de la durée d'émission sur le taux comptage

Nous avons mené l'étude de l'effet de la longueur d'émission neutronique sur le comptage jusqu'à une fréquence de tir de 2.5 kHz , pour des durées d'émission correspondantes de $40 \mu\text{s}$. La figure 3.31 représente le comptage moyen (sur 30 secondes) réalisé pour une salve unique de neutrons pour différentes durées d'émission.

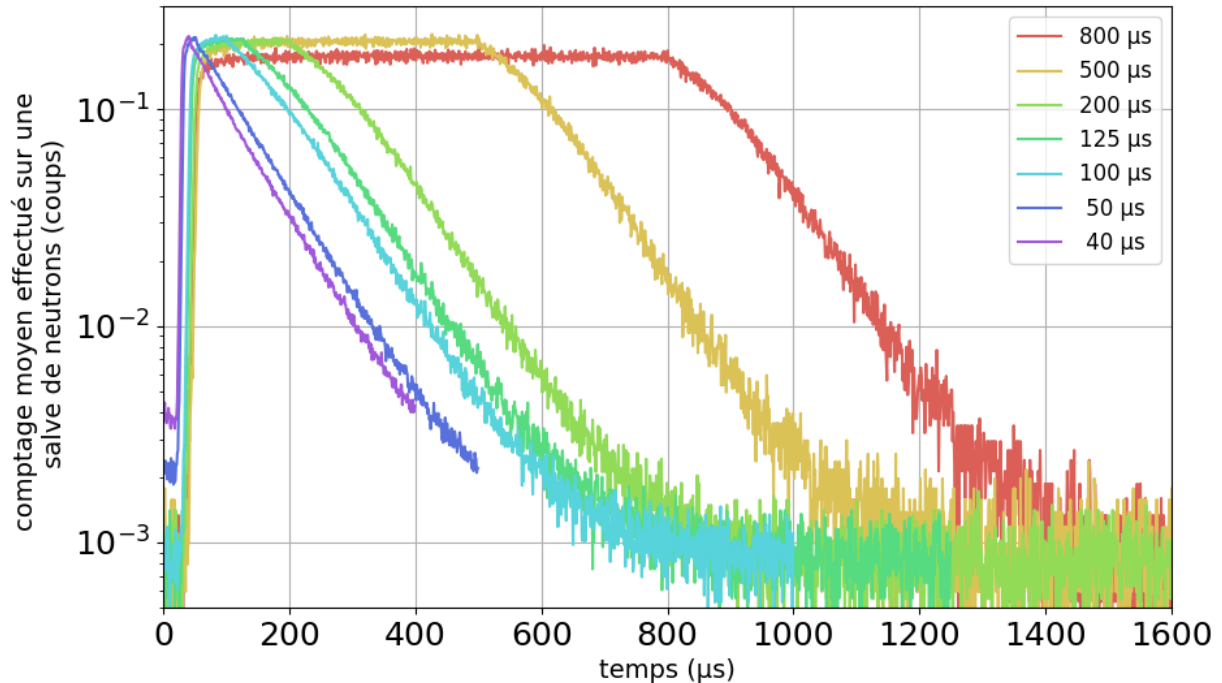


FIGURE 3.31 – Chronogrammes neutroniques représentant la moyenne d'une salve unique du générateur pour différentes durées de tir mesuré par la chaîne C (compteur 30NH15CS et préamplificateur de charge ACH-NA98), pour une émission moyenne de $7.9 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$.

A l'instar de la figure 3.29, la figure 3.31 ne montre pas une augmentation des pertes de comptage pendant l'émission neutronique comme pour la chaîne A et, dans une moindre mesure, la chaîne B. Pour une émission neutronique instantanée allant de 10^9 s^{-1} à $2 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$ ($\alpha_{\text{effectif}} = 5 \%$), la chaîne C sature dès le début de l'émission puis de façon uniforme. Nous observons, comme précédemment, une allure non physique du signal juste après la fin du tir. Dans le tableau 3.7 nous avons regroupé les *ICR* et *OCR* des différentes courbes tracées sur la figure 3.31. Les pertes de comptage diminuent ici aussi avec la réduction de la durée des impulsions. Ce résultat est bien mis en évidence sur la figure 3.31, où les impulsions courtes (40 et $50 \mu\text{s}$) présentent clairement une plus faible saturation.

TABLEAU 3.7 – Étude des pertes de comptage liées à l’émission neutronique du GENIE16 en mode pulsée de la chaîne de mesure C (compteur 30NH15CS et et préamplificateur de charge ACH-NA98), pour différentes durées de tir à une émission moyenne de $8.3 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$.

Durée de l’émission (μs)	$ICR \text{ (s}^{-1}\text{)}$	$OCR \text{ (s}^{-1}\text{)}$	$\frac{OCR \times 0.58}{ICR}$	Pertes de comptage liées au temps mort (%)
800	8.05×10^5	2.11×10^5	0.15	79
500	6.99×10^5	2.23×10^5	0.19	75
200	8.05×10^5	3.09×10^5	0.22	70
125	8.89×10^5	3.99×10^5	0.26	65
100	9.47×10^5	4.6×10^5	0.28	62
50	1.21×10^6	7.42×10^5	0.36	52
40	1.32×10^6	8.70×10^5	0.39	48

Malgré la réduction des pertes liées au temps mort avec la durée d’émission, elles restent très importantes (de l’ordre de 50 % pour des tirs de 40 et 50 μs) et il semble peu probable que la chaîne C permette de réaliser la mesure de porosité hydrogène par rétrodiffusion dans les conditions évoquées au chapitre 2.

- Mesures en émission pulsée à émission instantanée maximale

Nous avons réalisé quatre acquisitions avec des émissions instantanées élevées afin de vérifier l’inéligibilité de cette chaîne de mesure pour la sonde neutronique et pour mesurer l’effet sur la constante de temps mort τ de la réduction de la durée d’émission à 50 μs (à 2 kHz).

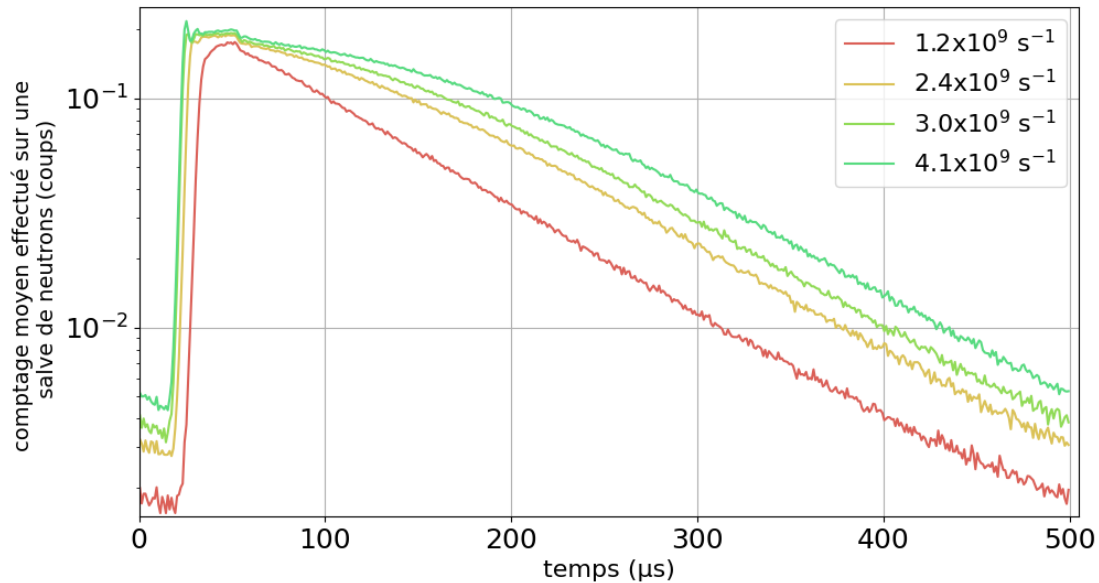


FIGURE 3.32 – Chronogrammes neutroniques représentant la moyenne d’une salve unique de 50 μs du générateur mesuré par la chaîne C (compteur 30NH15CS et préamplificateur de charge ACH-NA98) pour différentes émissions instantanées allant de $1.2 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$ à $4.1 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$.

Nous pouvons voir sur la figure 3.32 que la chaîne C est beaucoup plus sujette au temps mort que la chaîne B, voir la figure 3.27 où les signaux étaient relativement peu déformés. A partir d’une émission instantanée de $2.4 \times 10^9 \text{ s}^{-1}$, les courbes saturent vers un taux de comptage instantané $2 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$ (soit 0.2 coups par μs sur la figure).

Remarque : nous pouvons en déduire que dans le cas d'une émission neutronique continue très intense, par exemple 10^{10} s^{-1} , la chaîne C saturerait à un taux de comptage maximum de $2 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$ si son comportement reste non paralysable.

Nous pouvons combiner les données de cette figure 3.32 avec la figure 3.30 pour représenter les pertes liées au temps mort en fonction de l' ICR (divisée par 0.58) et de la longueur de tir en mode pulsé. Nous voyons alors sur la figure 3.33 que les acquisitions réalisées avec des salves de $50 \mu\text{s}$ suivent leur propre courbe de temps mort non paralysable. L'ajustement réalisé à partir de l'équation (3.5) conduit à une constante de temps mort associée à cette série d'acquisition de 550 ns . Ici aussi, la chaîne de mesure répond différemment en fonction du profil d'émission auquel elle est soumise.

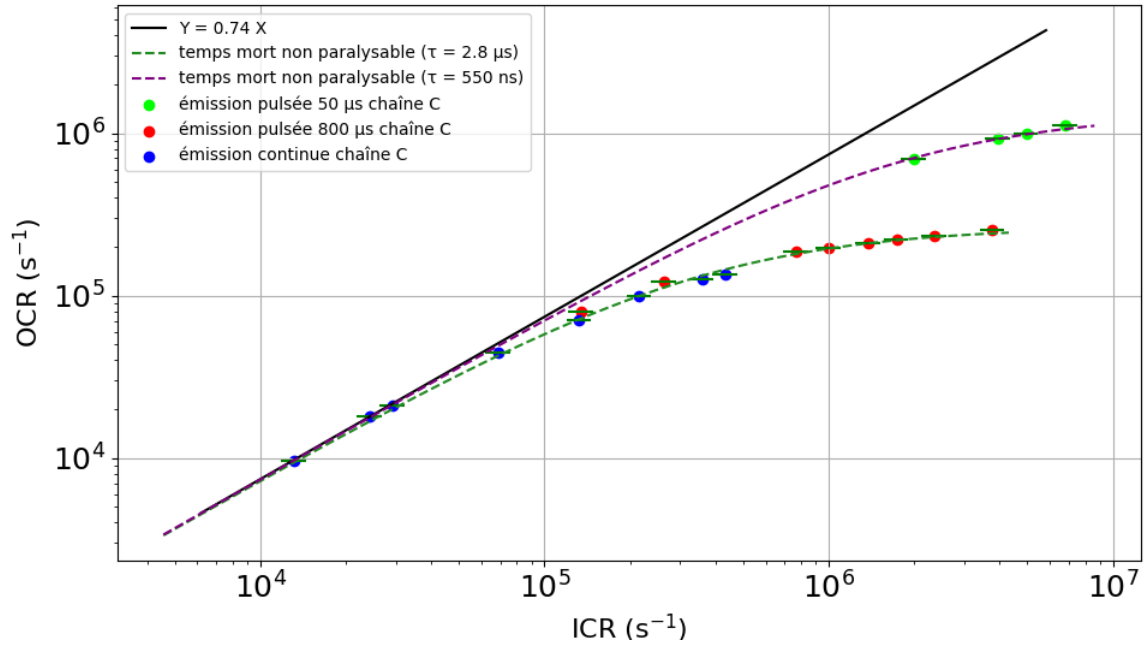


FIGURE 3.33 – Évolution des taux de comptages sortants (OCR) de la chaîne C (compteur 30NH15CS et préamplificateur de charge ACH-NA98) en fonction du taux instantané d'impulsions incidentes dans le compteur ^3He , pour des émissions en mode continu (en bleu), en mode pulsé à 125 Hz avec une durée de tir de $800 \mu\text{s}$ (en rouge) et en mode pulsé avec des impulsions de $50 \mu\text{s}$ à 2 kHz (en vert).

3.3.6 Synthèse de l'étude des pertes à fort taux de comptage

Nous pouvons à présent comparer les performances des différentes chaînes étudiées dans la partie 3.3.4. Le premier résultat important est l'effet de la durée de l'émission neutronique sur les pertes de comptage liées au temps mort, ce que nous pouvons estimer en utilisant les tableaux 3.3, 3.5 et 3.7. Nous pouvons voir sur la figure 3.34 que les pertes liées au temps mort des trois chaînes diminuent significativement avec la réduction de la durée d'émission neutronique.

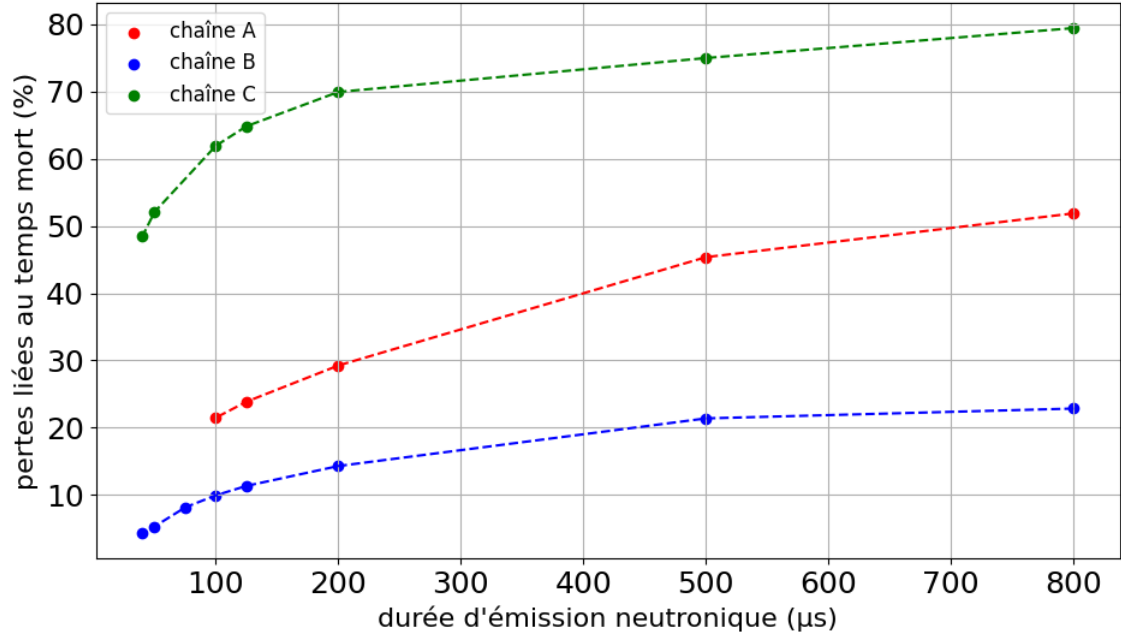


FIGURE 3.34 – Évolution des pertes de comptages liées au temps mort en fonction de la durée d'émission neutronique, pour les trois chaînes de mesure (A : 30NH15 + G-ADSF10, B : 30NH15CS +G-ADSF10, C : 30NH15CS + ACH-NA98).

Nous pouvons voir également cet effet sur la figure 3.35 qui compare les comptages moyens obtenus pour une salve de neutrons avec chacune des trois chaînes, pour une émission moyenne de $9 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ et des durées de tir de $800 \mu\text{s}$ ou $100 \mu\text{s}$.

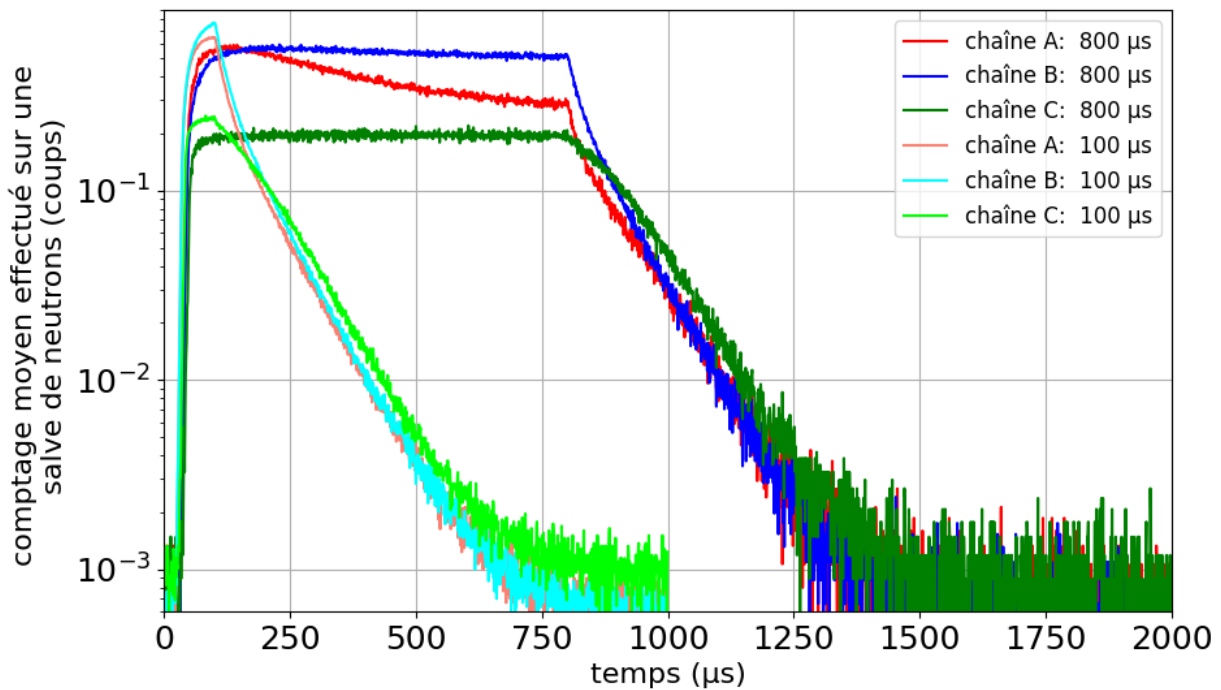


FIGURE 3.35 – Comparaison des chronogrammes neutroniques mesurés par les trois chaînes de mesure pour une émission moyenne de $9 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ et des durées de tir de $800 \mu\text{s}$ ou $100 \mu\text{s}$ (A : 30NH15 + G-ADSF10, B : 30NH15CS +G-ADSF10, C : 30NH15CS + ACH-NA98).

Nous retrouvons les résultats précédents : la chaîne B présente le moins de pertes et la forme du signal est la moins saturée. La chaîne A voit son efficacité diminuer fortement au cours d'un tir long, et présente un signal nettement moins déformé pour des émissions courtes. Enfin, la chaîne C est complètement saturée pendant le tir du générateur. Cependant, on peut voir qu'après récupération, par exemple dans la zone de décroissance post-émission ou celle correspondant à la source ^{252}Cf , elle compte environ 20 % de plus que les chaînes A et B.

Pour effectuer la mesure de porosité comme présentée au chapitre 2, la chaîne B est la plus appropriée. La chaîne C pourrait malgré tout s'avérer plus avantageuse pour des mesures avec des émissions neutroniques plus faibles, selon les caractéristiques de la sonde qui sera développée et notamment de son générateur de neutrons.

En fusionnant les figures 3.22, 3.28 et 3.33, nous obtenons le diagramme synthétique d'évolution des pertes de comptage pour les trois chaînes, en figure 3.36. La formule (3.5) a été utilisée pour les ajustements en pointillés, qui reproduisent bien les comportements non paralysable des chaînes B et C, pour différentes constantes de temps mort τ . La chaîne A présente elle un début de décroissance du signal mesuré (OCR) à partir d'un taux d'impulsions entrant (ICR) d'environ $2 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$.

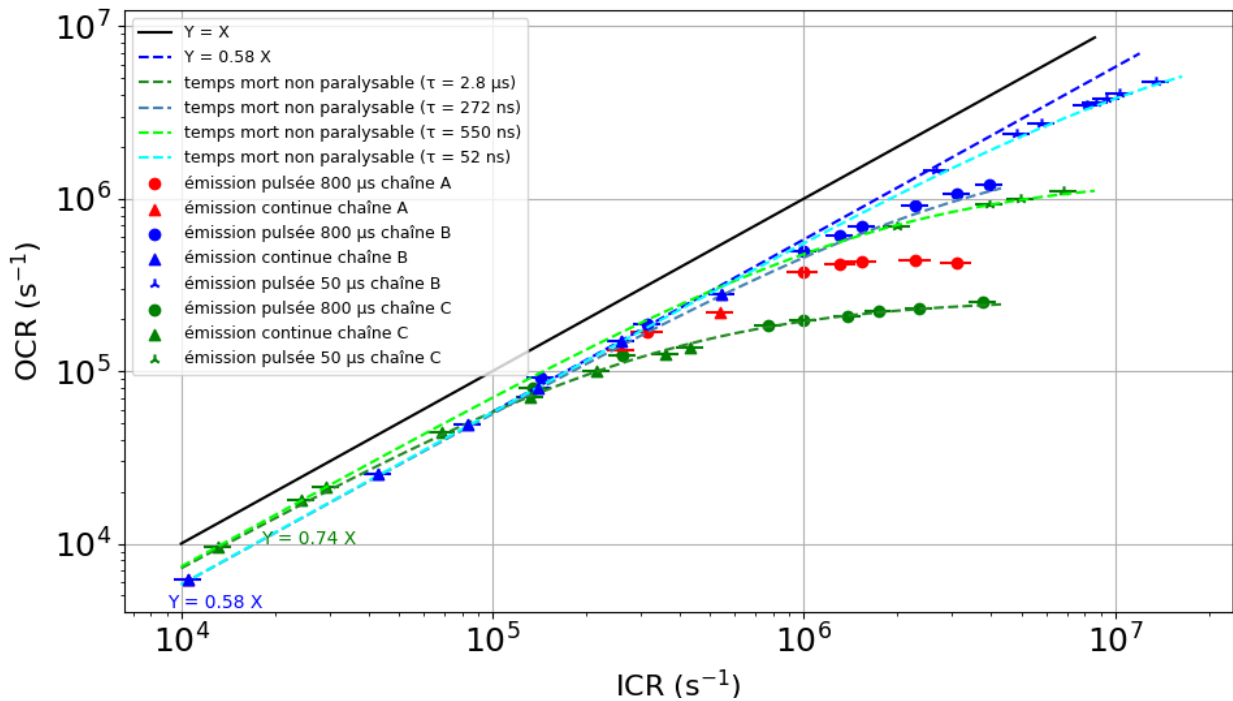


FIGURE 3.36 – Évolution des taux de comptages sortants (OCR) des trois chaînes (A : 30NH15 + G-ADSF10, B : 30NH15CS + G-ADSF10, C : 30NH15CS + ACH-NA98) en fonction du taux instantané d'impulsions incidentes dans le compteur ^3He , pour des émissions en mode continue (triangles), en mode pulsée (cercles) à 125 Hz (tir de 800 μs), et en mode pulsée avec des impulsions de 50 μs (croix triangulaire).

Les acquisitions des chaînes A et B s'alignent à basse émission sur la droite $Y = 0.58 X$ (facteur de pertes dues au seuil bas électronique égal à 0.58 pour l'amplificateur G-ADSF10 à collection de courant) alors que la chaîne C s'aligne sur la droite $Y = 0.74 X$ (facteur 0.74 pour l'amplificateur de charge ACH-NA98). Nous pouvons déterminer graphiquement le point de concours des courbes de tendance qui se situe à un ICR de $1.05 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$, taux de comptage incident jusqu'auquel la chaîne C est la plus intéressante lorsque l'émission est continue ou avec des impulsions longues. Pour des tirs de $50 \mu\text{s}$, il est plus favorable d'utiliser l'ACH-NA98 jusqu'à un ICR de $5.7 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$. Au-delà de ces valeurs, la chaîne B est la plus performante.

Au sein de cette campagne expérimentale, nous avons pu explorer de très hauts taux de comptage avec la chaîne B, jusqu'à un taux de comptage moyen de $2.46 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$ pour une émission moyenne de $4.18 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$ et un taux de travail effectif de 5.1 %. Cela correspond à un taux de comptage sortant instantané OCR de $4.8 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ avec un taux d'impulsions incidentes ICR de $1.34 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ et les pertes de comptage sont donc de 64 %, mais la contribution liée au temps mort n'est que de 38 % si on déduit les pertes liées au seuil électronique (facteur 0.58). Ces mesures montrent qu'il est possible de mesurer le signal neutronique rétrodiffusé pour une émission neutronique moyenne de 10^8 s^{-1} et un taux de travail de 1 % après un tir d'environ $50 \mu\text{s}$ avec un amplificateur en collection de courant de type G-ADSF10 et un compteur 30NH15CS. En pratique, la chaîne va être affectée par l'émission instantanée importante pendant le tir et pendant la fenêtre d'intégration, juste après ce dernier, il faudra corriger des pertes de comptage liées au temps mort qui seront de l'ordre de 30 %. Nous avons aussi remarqué que l'instrumentation reste non paralysable lorsqu'elle est exposée à cet ordre de grandeur de taux d'impulsions entrantes, il est alors possible de corriger les pertes liées au temps mort.

3.4 Validation de la mesure PFN en fût d'étalonnage

La deuxième campagne de mesures a été conçue dès le début de la thèse, et elle s'est déroulée entre octobre 2022 et mai 2023. L'objectif fixé, est d'une part, la validation expérimentale de la mesure de teneur en uranium par détection de neutrons prompts de fission (PFN) et, d'autre part, de valider le schéma de calcul, notamment le choix des bibliothèques de données et la méthode de calcul utilisées avec MCNP6.1 afin de pouvoir prédire le signal utile et le bruit de fond. Une fois le signal expérimental bien compris et reproduit par les simulations, il est possible d'utiliser ces dernières pour prédire le comportement d'une sonde neutronique dans un puits de forage, à condition que la géométrie testée expérimentalement se rapproche suffisamment des environnements de mesure attendus.

3.4.1 Présentation du dispositif de mesure

- Le Tonneau des DANAÏDES

Nous avons fait construire un dispositif de mesure qui se rapproche au mieux d'un puits de forage, mais qui puisse être utilisé et déplacé dans notre installation. La première de nos limitations a été le diamètre du fût de mesure. Comme montré figure 3.1, la chicane permettant d'accéder à la casemate d'irradiation n'est large que de 120 cm, et même 108 cm à certains endroits à cause de canalisations. Nous avons donc dû restreindre le diamètre externe du dispositif à 100 cm. La masse du fût a été notre deuxième contrainte, il nous fallait pouvoir l'introduire à l'intérieur de la casemate et le déplacer facilement pour cohabiter avec les autres expériences. Une capacité de 1 m^3 représente une masse équivalente de 1.6 t de sable sec. Nous nous sommes limités à une masse totale de 2 t, pour pouvoir utiliser un transpalette pour la manutention dans le cas où nous serions incapables de bouger le dispositif à la main. La géométrie finale du fût de mesure baptisé « Tonneau des DANAÏDES » est un fût de 100 cm de diamètre extérieur, 150 cm de hauteur et de capacité totale 1.18 m^3 , monté sur 4 roulettes.

Remarque : nous avons également songé à effectuer le remplissage en sable directement dans la casemate DANAÏDES ou à concevoir un dispositif démontable (découpage en plusieurs secteurs). La première solution impliquait un remplissage particulièrement contraignant dans l'installation TOTEM. La deuxième, du fait de la complexité de conception, impliquait un coût et des délais de fabrication trop importants.

La figure 3.37 montre le « Tonneau des DANAÏDES » vers la fin de sa fabrication, dans les ateliers de la société FOSELEV [76] qui a effectué sa construction sur la base de nos spécifications. Ce fût possède un cylindre central de 20 cm de diamètre (zone 2), qui correspond au puits de forage de référence (200 mm) simulé dans le chapitre 2. À l'intérieur, sont soudés 3 rails permettant d'y fixer un fourreau d'instrumentation (zone 3) de 11 cm de diamètre qui correspond au boîtier de la maquette de sonde neutronique de laboratoire. Ils permettent de plaquer ce dernier contre les parois du cylindre intérieur, et d'assurer la reproductibilité des résultats. Finalement, la zone extérieure (notée 1) de 40 cm d'épaisseur (rayon externe de 50 cm – rayon interne de 10 cm), simule la formation géologique et contient (une fois remplie) du sable de Fontainebleau [?]. Deux trappes déboulonnables sur la paroi externe de la structure permettent de vidanger le sable par le bas.

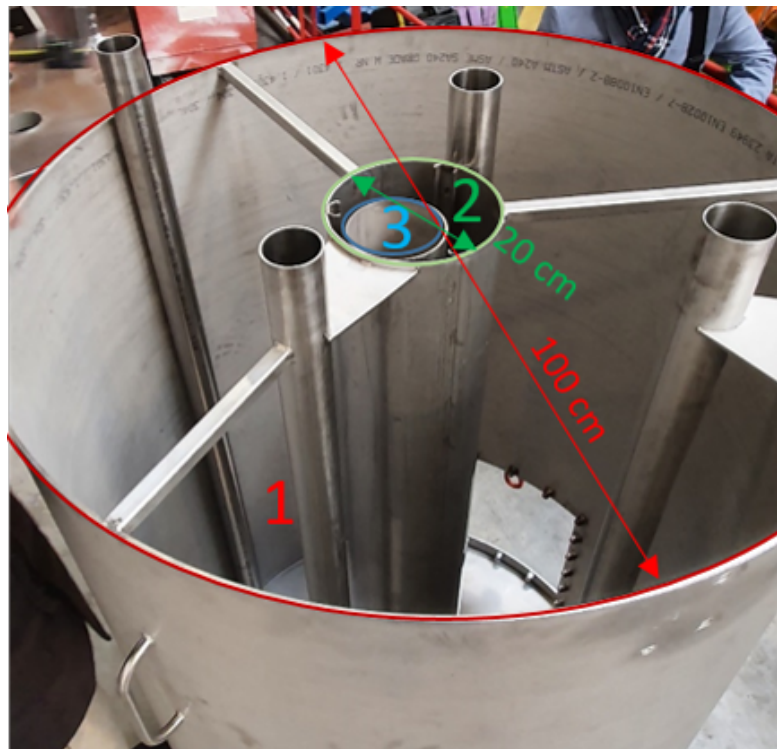


FIGURE 3.37 – « Tonneau des DANAÏDES » en cours d'assemblage dans les installations de FOSELEV [76]. La zone 1 correspond au secteur de la formation géologique (elle sera remplie de sable), la zone 2 au secteur puits (qui peut être remplie d'eau) et la zone 3 au fourreau d'instrumentation.

Sur cette même figure, on peut observer 4 tubes de 6 cm de diamètre disposés en croix autour du centre du fût de mesure, à différentes distances du centre (13.2 cm, 24.8 cm, 34.1 cm, 47.5 cm), où l'on peut introduire des porte-échantillons avec une plaquette d'uranium enrichi (voir section 3.4.3).

Pour être le plus représentatif possible d'un puits de forage, le tonneau des DANAÏDES a été construit avec des normes d'étanchéité, pour pouvoir contenir de l'eau dans les parties internes (puits) et externes (formation) indépendamment. C'est une raison supplémentaire qui explique la présence de rails dans la partie centrale, afin de limiter l'effet de la poussée d'Archimède sur le déplacement du fourreau une fois immergé. Des tuyaux et robinets d'évacuations sont présents au centre et dans la partie externe du fût afin de pouvoir vidanger l'eau des différents compartiments de façon indépendante. La dernière étape consista à remplir la zone « 1 » du fût de mesure par du sable de Fontainebleau, réputé pour sa grande pureté ($\text{SiO}_2 > 99\%$), représentant 1.6 tonnes de sable.

- Bloc de détection expérimental

Nous avons conçu le bloc de détection au plus proche de celui simulé dans le chapitre 2 (voir figure 2.2) mais ici le générateur, qui est trop épais pour entrer complètement dans le fourreau comme nous le verrons plus loin en figure 3.40, est situé au-dessus du bloc de détection. De plus, il faut alimenter le compteur ^3He et récupérer son signal à l'aide d'un câble blindé de type HN, particulièrement rigide. Il a fallu, avec ces contraintes supplémentaires, assurer une parfaite « étanchéité » de notre blindage aux neutrons thermiques, à savoir le fait de n'avoir aucune vue directe de l'intérieur du bloc au travers de l'enveloppe en cadmium. Sur la figure 3.38 nous avons représenté le modèle MCNP du bloc de détection utilisé pendant cette deuxième campagne expérimentale, ainsi qu'une photographie de ce dernier.

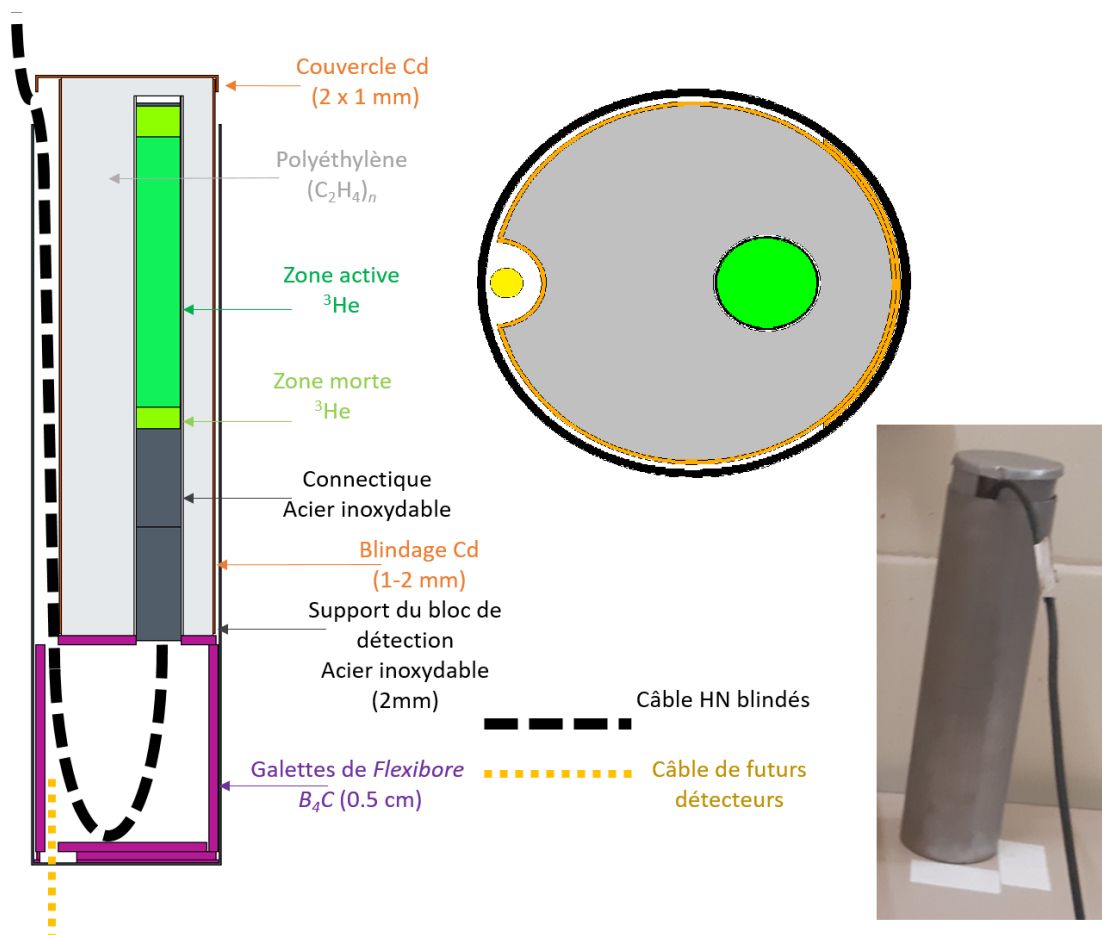


FIGURE 3.38 – Bloc de détection de la campagne de mesure 2022-2023, vue en coupe réalisée avec MCNPX VisED [23] (à gauche) et photographie du bloc tel que réalisé puis monté (à droite).

L'ensemble du bloc est maintenu dans une boîte cylindrique en acier inoxydable (longueur 38 cm, épaisseur 2 mm, diamètre 10.4 cm) pour éviter les contacts manuels avec le cadmium (toxique). Afin que le compteur ^3He présente son extrémité nue face au module d'émission neutronique, situé au-dessus, nous avons fait creuser un bloc de polyéthylène cylindrique permettant d'insérer le détecteur dans le bloc avec sa connectique vers le bas. Une feuille de cadmium, de 1.1 mm d'épaisseur, est pliée autour du PE et se recouvre sur la face excentrée (côté formation géologique) du bloc, où elle offre une épaisseur de 2.2 mm. Nous avons disposé des galettes de 5 mm découpées dans du Flexibore[®] (élastomère chargé en B_4C) de sorte à limiter géométriquement le flux de neutrons thermiques qui passeraient par la connectique. L'espace ainsi délimité par le Flexibore[®] offre les 9 cm nécessaires au câble HN pour se plier complètement et ressortir le long d'une gouttière (ce câble immunisé aux perturbations électromagnétiques ayant un rayon de courbure relativement élevé). Cette dernière est creusée dans le bloc de PE, recouverte et protégée par la feuille de cadmium pliée autour de ce dernier.

Remarque : le plan en coupe représenté sur la figure 3.38 est positionné sur la zone la plus large de la gouttière, en reculant ou en avançant le plan, le PE et le cadmium occupent plus d'espace au sein du bloc.

L'ensemble du bloc de détection mesure 41.2 cm, le blindage en cadmium et le bloc de PE sortant de la boîte en acier inoxydable de quelques centimètres. Deux couvercles en cadmium reposent sur le bloc de PE pour présenter 2.8 mm d'épaisseur face au module d'émission neutronique (MEN). Un trou de 2 cm de diamètre dans la base de la boîte en acier inoxydable permet le passage de câbles en cas d'ajout futur d'autres détecteurs en dessous du bloc de détection. Les galettes de Flexibore[®] reposant sur cette surface permettent de « fermer » l'ouverture en n'alignant pas les trous de sortie du PE et de l'acier inoxydable.

- Modélisation de l'expérience

Nous avons entrepris de décrire au mieux l'expérience dans une simulation MCNP, en nous basant à la fois sur la description de DANAÏDES présentée en 3.2.1 (voir figure 3.2), sur le modèle du MEN16 LL (figure 3.14), sur les plans techniques et sur nos relevés du tonneau des DANAÏDES tel que construit. La figure 3.39 montre ce dernier dans notre casemate d'irradiation. Nous y avons superposé notre modélisation MCNPX ViSED pour représenter la structure interne. Nous avons utilisé des cales réglables en acier inoxydable pour ajuster la hauteur du bloc de détection comme nous pouvons le voir sur la photographie de gauche. Il y a un espace de quelques centimètres entre ce dernier et le MEN, qui est maintenu par un support bloquant métallique (voir figure 3.40).

Toujours sur l'image de gauche, nous avons représenté en jaune, le support plastique que nous avons utilisé pour positionner notre plaquette d'uranium pour les mesures associées. En violet, nous voyons le moniteur externe fixé au mur de DANAÏDES (un effet d'optique laisse à penser qu'il est introduit dans un des canaux, mais il est derrière le fût). Sur la photographie à droite, nous avons nommé les différents canaux d'instrumentation permettant d'introduire les porte-échantillons, respectivement A, B, C et D du plus proche au plus éloigné du centre du fût.

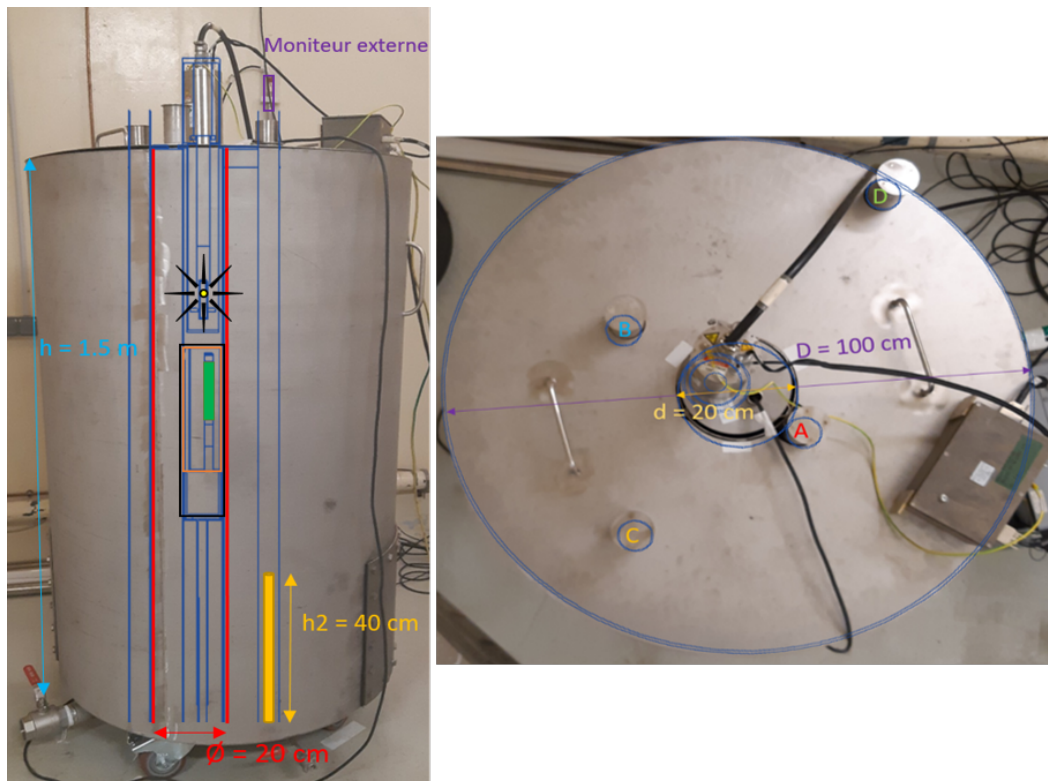


FIGURE 3.39 – Photographies du « Tonneau des DANAÏDES » en vue de côté et du dessus (respectivement à gauche et à droite), avec superposition du modèle MCNP (réalisé via MCNPX ViSED [23]). Le cylindre interne du fût est repéré par le rectangle rouge, le blindage cadmium du bloc de mesure par celui en orange et le volume actif du détecteur est en vert. Les 4 tubes portes-échantillons sont visibles à droite (repères A, B, C, D).

Sur la figure 3.40 nous pouvons voir deux photographies focalisées sur le haut du fût de mesure. À gauche, nous avons représenté en pointillés les 3 positions possibles pour le fourreau d'instrumentation, respectivement nommées α , β et γ (en rouge, vert et bleu). La position α sert de référence, car elle est dans le plan formé par les canaux A, B et le centre du dispositif. Les autres positions sont des rotations successives de 120° dans le sens horaire.

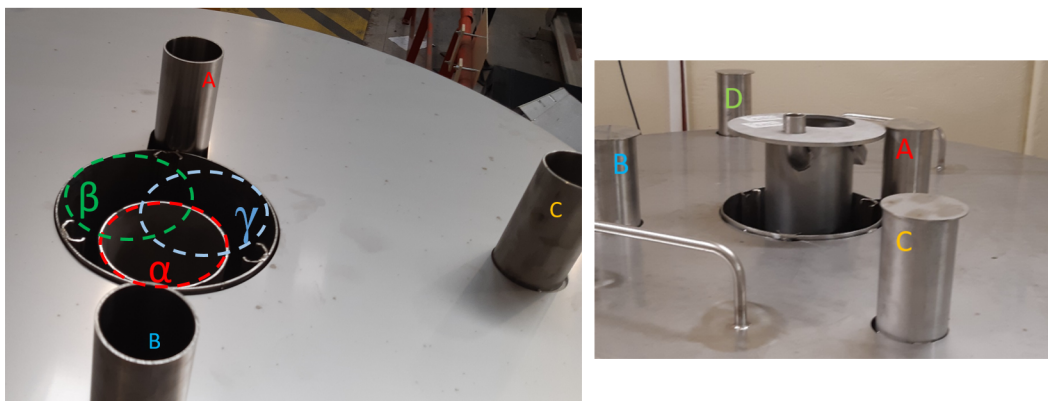


FIGURE 3.40 – Photographies représentant les 3 positions possibles du fourreau d'instrumentation (à gauche) et le support bloquant du module d'émission neutronique (à droite).

La photographie de droite montre le fourreau d'instrumentation en position β , mais non complètement rentré dans le dispositif. On y voit le support bloquant qui permet de poser le générateur sur le dispositif. C'est un disque qui laisse passer la partie fine du MEN16 LL mais pas la partie renflée (voir figure 2.1), assurant ainsi que ce dernier ne tombe ou ne bascule.

Finalement, nous avons estimé à $1.6 \text{ ppm}_U (\pm 0.8)$ la teneur en uranium du sable, par spectrométrie γ haute résolution avec un détecteur au germanium hyper pur (raies à 766 et 1001 keV du $^{234}\text{Pa}^*$, voir annexe G). Cette valeur est compatible avec la concentration moyenne crustale de 3 ppm_U (voir chapitre 1). Nous avons également pesé un échantillon de 50 cm^3 et mesuré la masse volumique de notre sable, soit $1.61 (\pm 0.05) \text{ g cm}^{-3}$ (correspondant à une porosité totale de 40 %). Par conséquent, le sable a été modélisé comme une silice pure contenant 2 ppm_U d'uranium et avec une densité apparente de 1.61.

Remarque : Dans notre dispositif expérimental, la distance entre la cible en hydrure de titane (imprégnée de tritium) où se produit l'émission neutronique et la face supérieure du volume de détection actif de notre compteur ^3He est estimée à 18 cm. Les simulations MCNP nous donnent l'efficacité de détection théorique ϵ_2 de cette nouvelle géométrie, pour des neutrons émis à 14 MeV : $\epsilon_2 = 2.1 \times 10^{-3}$.

- Pertes de comptage électroniques

Nous avons utilisé la chaîne B, composée du 30NH15CS et d'un G-ADSF10 pour cette deuxième campagne de mesures. Nous avons vu dans la section 3.3 que les pertes de l'électronique étaient en partie liées au profil de l'émission neutronique. Nous allons ici tirer à 500 Hz, pour des salves de neutrons longues de $200 \mu\text{s}$ (en l'absence de retard à l'amorçage) et une période de répétition de 2 ms. La figure 3.41 montre des acquisitions réalisées sur 2h (7200 s) pour des émissions moyennes allant de $7.5 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ à $7.9 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$. Les données ont été regroupées en post-traitement entre 500 et $2000 \mu\text{s}$, passant de 1 à 32 points par μs , afin de lisser les fluctuations statistiques et d'améliorer la lisibilité.

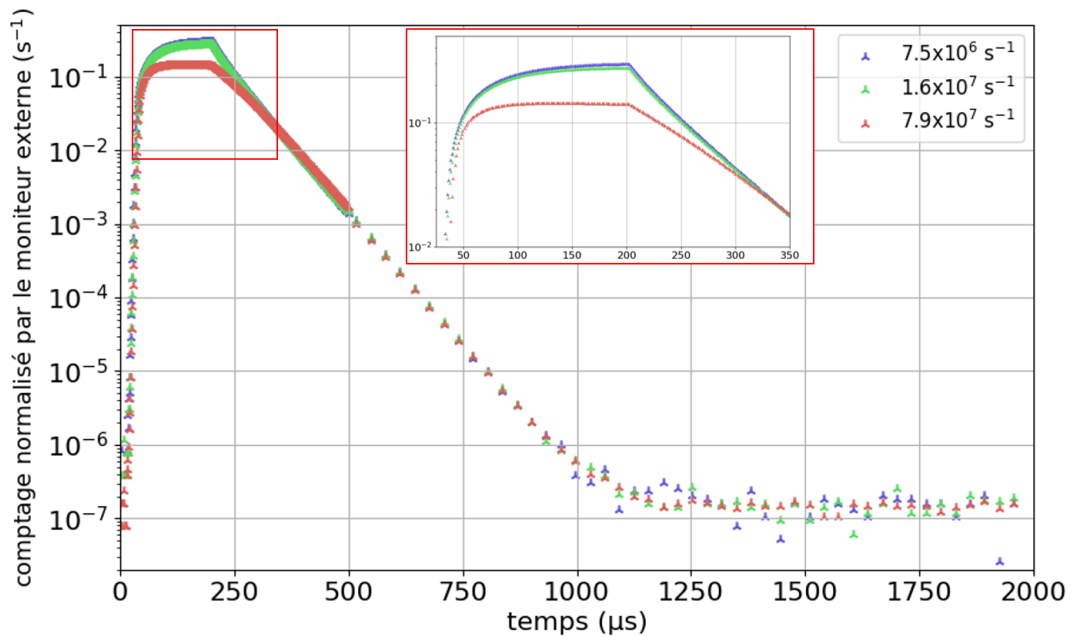


FIGURE 3.41 – Chronogrammes neutroniques mesurés par la chaîne B sur 7200 secondes à 500 Hz pour différents taux d'émission neutronique moyenne, normalisés par le moniteur externe. Les bouffées de neutrons du générateur pulsé durent $200 \mu\text{s}$ et sont espacées de 2 ms.

Nous pouvons voir sur la figure 3.41 que le retard à l'amorçage est relativement constant et de l'ordre de $20 \mu\text{s}$, ce qui induit un taux de travail effectif de 9 %. Les trois courbes ont été divisées par le comptage total mesuré par le moniteur externe, qui est proportionnel à l'émission neutronique moyenne réelle. Les courbes bleue et verte se superposent presque, l'écart relatif au maximum du signal étant de 7 %, alors que le taux d'émission a plus que doublé. En revanche, la courbe rouge avec un taux d'émission beaucoup plus grand présente le même aspect saturé que précédemment dans la partie 3.3. Dans l'encadré rouge, on voit qu'il faut environ $130 \mu\text{s}$ pour que la chaîne récupère, et que les courbes se confondent à nouveau.

Il est possible de calculer le taux d'impulsions incidentes dans l'instrumentation à l'aide de l'équation (3.3) dans laquelle nous utilisons la nouvelle valeur d'efficacité de détection théorique ϵ_2 , ϵ_1 n'étant valable que dans la géométrie de mesure de la partie 3.3. Le taux de comptage en sortie de la chaîne est toujours calculé avec l'équation (3.4). La figure 3.42 représente le diagramme de transmission de la chaîne d'acquisition (taux de comptage en sortie OCR vs. taux d'impulsions en entrée ICR) qui nous permet de déterminer si elle est paralysable ou non, ainsi que la constante de temps d'occupation τ pour traiter chaque impulsion.

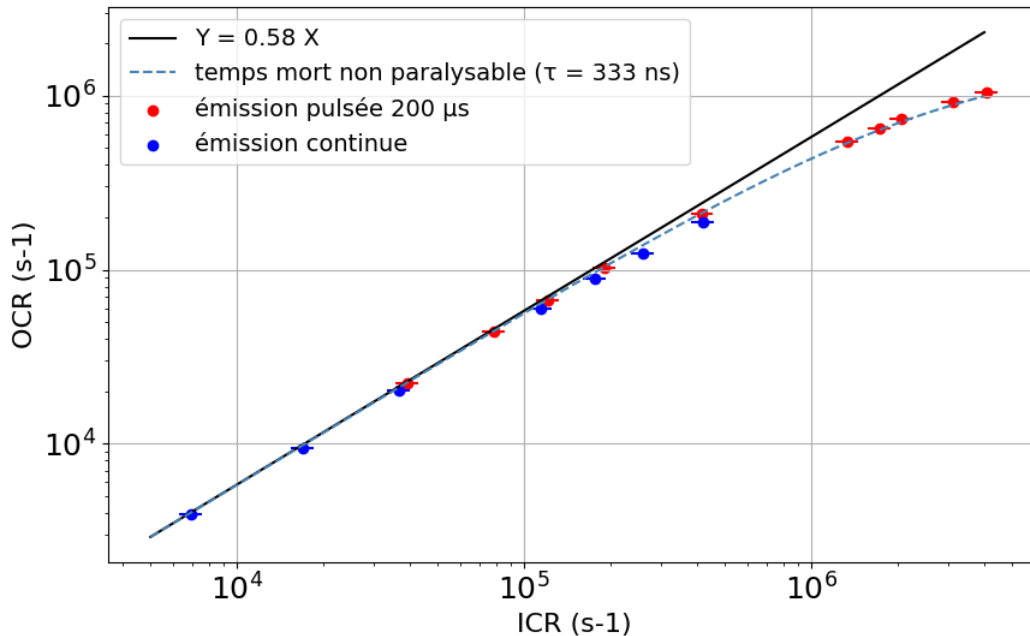


FIGURE 3.42 – Évolution des taux de comptages sortant (OCR) de la chaîne de mesure en fonction du taux instantané d'impulsions produites dans le compteur ^3He , pour des émissions en mode continu (en bleu) et en mode pulsé (en rouge) à 500 Hz avec une durée d'impulsion de $200 \mu\text{s}$.

Nous retrouvons bien le comportement étudié précédemment en partie 3.3.4 : la chaîne est non paralysable et les points suivent l'équation (3.5) avec $\tau=333$ ns. Cependant, nous nous attendions à avoir une valeur de τ comprise entre 52 et 272 ns, la durée des salves de neutrons du MEN ($200 \mu\text{s}$) étant comprise entre les valeurs précédemment étudiées de 50 et 800 μs . Une explication sur la base d'acquisitions complémentaires pourrait être que le flux de rayonnements γ auquel est soumis le détecteur pendant le tir est bien plus important dans notre fût de mesure, à cause de la matière entourant le fourreau instrumentation, que lors des mesures réalisées au début de ce chapitre 3 avec le petit bloc de détection contre le générateur (figure 3.19). En effet, lors de cette première campagne de mesure en 2021, environ la moitié des neutrons émis par le générateur interagissait loin du compteur. Ici, les 40 cm de sable réduisent considérablement la distance moyenne des premières interactions.

3.4.2 Étude du bruit de fond

Avant de pouvoir analyser le signal utile provenant des PFN entre 1 et 2 ms après le début de la séquence de tir, il faut caractériser le bruit de fond dans cette plage temporelle. Cette section est consacrée aux mesures réalisées sans plaquette d'uranium dans le dispositif de mesure.

- Mesure du bruit de fond passif

Lorsque le générateur de neutrons est éteint, les seuls neutrons que l'on peut mesurer avec notre dispositif sont issus de la radioactivité naturelle des murs en béton de la casemate DANAÏDES (qui présentent une teneur en uranium naturel de l'ordre de quelques ppm *a priori*), et des rayonnements cosmiques. Cette dernière contribution est prépondérante [73] pour notre mesure en laboratoire mais les mesures en puits seront peu affectées par les neutrons d'origine cosmique, au-delà de quelques mètres de profondeur.

TABLEAU 3.8 – Mesures de bruit de fond passif.

Date de la mesure	Remplissage du puits central	Durée (s)	Comptage (coups)	Incertitude de comptage (coups)	Taux de comptage (s^{-1})	incertitude de taux de comptage (s^{-1})
21/03/2023	air	18824	243	15.6	1.29×10^{-2}	8.28×10^{-4}
07/06/2023	eau	28303	442	21.0	1.56×10^{-2}	7.43×10^{-4}
Nuit du 08 au au 09/06/2023	eau	28016	420	20.5	1.5×10^{-2}	7.32×10^{-4}

Les 3 acquisitions présentées dans le tableau 3.8 ont été réalisées sur des durées comprises entre 6 h et 8 h. Ces durées nous permettent d'obtenir des incertitudes statistiques relatives sur le comptage de l'ordre de 5 %. La première ligne du tableau correspond à notre dispositif tel que présenté dans la partie 3.4.1, avec de l'air dans le tube intérieur du fût qui simule le puits de forage. Les deux autres acquisitions ont été réalisées après avoir rempli cet espace avec de l'eau déminéralisée, pour l'étude présentée en 3.4.4. Plusieurs hypothèses pourraient être avancées pour expliquer la légère augmentation de bruit de fond passif entre les mesures avec le puits central en air et en eau, avec notamment la production de photoneutrons rapides dans le deutérium de l'eau par le rayonnement cosmique, mais dans l'ensemble, le bruit de fond passif est très faible avec moins d'un coup par minute et nous n'avons donc pas mené d'investigations sur ce sujet. Nous pouvons voir par ailleurs que les taux de comptage des mesures réalisées en juin 2023, à un peu plus d'un jour d'intervalle, sont compatibles aux incertitudes statistiques près.

La durée d'intégration du signal utile, entre 1 et 2 ms, représente la moitié du temps de mesure total, c'est-à-dire de celle d'un cycle irradiation-comptage puisque la période de répétition des tirs est de 2 ms (fréquence de 500 Hz). La contribution du bruit de fond passif sur cette plage de mesure est donc égale au taux de comptage lié à ce dernier intégré sur la moitié de la durée totale de mesure (en coups). En termes de taux de comptage (en s^{-1}), si le puits central de notre fût est rempli d'air, nous prendrons une valeur de bruit de fond égale à la moitié de celle du tableau 3.8, soit $6.45 \times 10^{-3} s^{-1}$. Pour la partie 3.4.4 avec le puits en eau, nous prendrons la moitié de la valeur moyenne des deux mesures du tableau, soit $7.65 \times 10^{-3} s^{-1}$.

- Mesure du bruit de fond actif

Le bruit de fond actif correspond aux coups mesurés sur la zone d'intégration du signal utile, qui sont liés aux neutrons interrogateurs et directement proportionnels à l'émission du générateur. C'est ce que nous pouvons voir sur la figure 3.41, les courbes correspondant aux différentes émissions, normalisées par le moniteur externe, se superposant entre 1 ms et 2 ms.

Nous avons réalisé des acquisitions de 2 h avec une émission moyenne de $7.5 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ (courbe bleue sur la figure 3.41), suffisamment faible pour garantir un taux d'empilement moyen inférieur à 5 % tout en ayant une statistique de comptage suffisante, de façon à comparer au mieux les résultats issus de simulation MCNP avec l'expérience, notamment pendant le tir du générateur. La figure 3.43 montre une première comparaison entre les bruits de fond actifs simulé et expérimental.

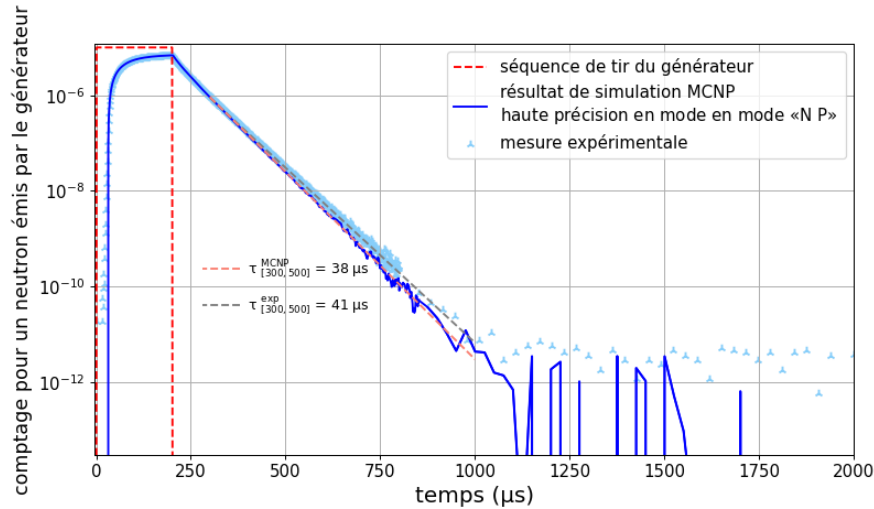


FIGURE 3.43 – Comparaison d'un chronogramme neutronique simulé par MCNP (lignes bleu foncé) et d'une acquisition expérimentale (marqueurs bleu clair). La séquence d'émission attendue du générateur, entre 0 et 200 μs , est représentée en pointillés rouges (on note un retard à l'amorçage de 23 μs).

Sur la figure 3.43, la courbe continue en bleu foncé montre le résultat de simulation produit par MCNP, utilisé ici en mode « N P » de façon à poursuivre à la fois les neutrons et les rayonnements γ induits par ces derniers, qui pourraient générer des photoneutrons. Les taux de réaction (n,p) dans le gaz ^3He ont été multipliés par le facteur de pertes électroniques $k_{seuilB} = 0.58$. Les marqueurs bleu clairs correspondent à une mesure réalisée pendant 2 h (7200 s) avec l'émission moyenne de $7.5 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$. Le nombre de coups mesuré dans chaque canal a été divisé par l'émission totale mesurée, les deux courbes sont donc exprimées en coup par neutron source. Les données de plusieurs canaux ont été sommées en post-traitement entre 850 et 2000 μs , passant de 32 à 1 canal par μs , afin de lisser les fluctuations statistiques et d'améliorer la lisibilité.

Lorsque nous comparons les deux courbes, l'accord est très bon pendant le tir du générateur (moins de 2.5 % d'écart moyen entre 0 et 200 μs) puis reste acceptable jusqu'à 1000 μs (écart moyen de 3.2 %), entre l'arrêt du tir et le début de la zone d'intérêt. Nous constatons cependant une légère différence de constante de décroissance du signal entre 300 et 850 μs , la demi-vie correspondant au signal simulé étant légèrement plus courte que celle du signal mesuré (38 μs au lieu 41 μs), ce qui peut s'expliquer, par retour d'expérience, par la finesse de modélisation du bloc de détection (géométries et densités exactes des éléments modérateurs et absorbants) que cette constante caractérise.

Nous avons enregistré un total de 218 coups pendant la fenêtre d'intérêt du signal utile entre 1 et 2 ms, sur 2 h de mesure avec l'émission moyenne de $7.5 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$. La contribution du bruit de fond passif lors de cette mesure longue n'est pas négligeable avec $6.45 \times 10^{-3} \times 7200 = 46$ coups. Le bruit de fond actif net de cette mesure, que l'on devrait retrouver dans la simulation MCNP, est alors de $172 (\pm 18)$ coups. Or la simulation de bruit de fond actif la plus précise ayant été calculée estime à seulement $39 (\pm 12)$ coups le signal correspondant, après multiplication par k_{seuilB} . Malgré les incertitudes importantes, ces résultats sont incompatibles et un ou plusieurs phénomènes non simulés doivent être à l'origine du déficit de coups prédits par la simulation.

L'hypothèse la plus simple que nous avons envisagée est la présence de fuites thermiques dans le blindage de notre bloc de détection. Nous aurions alors une fraction des neutrons thermiques, ici de l'ordre de 1 pour 10^6 neutrons incidents sur le bloc, qui passeraient par les petites surfaces non protégées par la feuille du cadmium, produisant ce signal entre les tirs du générateur. Pour vérifier cette première hypothèse, nous avons exagéré dans la simulation la taille de l'interstice entre le couvercle supérieur et le corps du bloc de détection (voir figure 3.38 au niveau du passage du câble) formés par les feuilles de cadmium, en passant de 0.5 mm comme mesuré sur le bloc de détection expérimental à 0.5 cm dans un calcul spécifique, sans que les résultats ne changent significativement.

Des travaux antérieurs menés au laboratoire [44] s'étaient intéressés à la production de photoneutrons via des réactions combinées (n, γ) puis (γ, n) . Plus spécifiquement pour celles induites par le cadmium. D'autres travaux ont conduit à des modifications de la bibliothèque de production des rayonnements de capture du cadmium [77] pour reproduire plus fidèlement les mesures. Nous avons testé cette bibliothèque modifiée pour voir si la différence de bruit de fond actif provenait de réactions photo-nucléaires. Là encore, les résultats de simulations n'expliquent pas la sous-estimation importante du bruit de fond actif mesuré par la simulation. La figure 3.44 représente les résultats de simulations testant ces deux hypothèses, superposés à la figure 3.43.

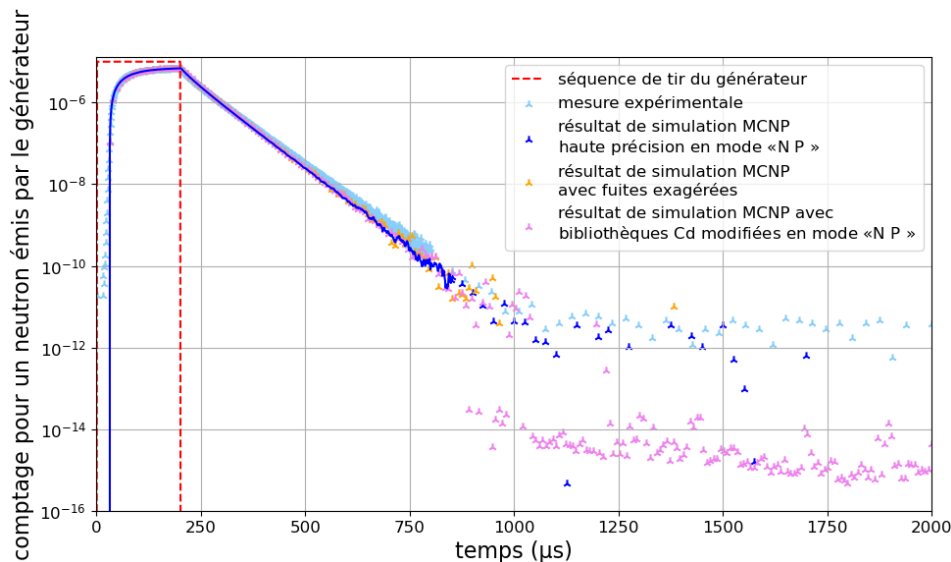


FIGURE 3.44 – Comparaison des chronogrammes neutroniques simulés par MCNP (ligne et marqueurs bleu foncé, verts et roses) pour vérifier les hypothèses expliquant l'amplitude mesurée (marqueurs bleu clair) de bruit de fond actif. La séquence d'émission attendue du générateur, entre 0 et 200 μs , est représentée en pointillés rouges.

On remarque que la courbe en marqueurs orange, représentant la simulation réalisée en exagérant les fuites neutroniques, comporte de nombreux canaux à 0, d'où le nombre de points apparents moins importants. Pour pouvoir comparer quantitativement les différentes courbes, nous avons calculé les intégrales entre 1000 et 2000 μs et les avons regroupés dans le tableau 3.9.

TABLEAU 3.9 – Comparaison du nombre de coups attendus ou mesuré entre 1000 et 2000 μs après le début de la séquence de tir, pour une durée de 2h et une émission neutronique moyenne de $7.52 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$.

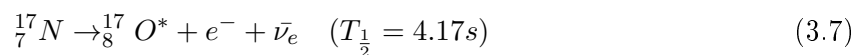
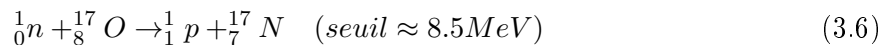
signal	Nombre de coups mesurés ou attendus	Incertitude associée (1σ)
B DFA mesuré	218	15
B DFA net mesuré	172	18
Simulation MCNP (mode « N P »)	39	12
Simulation MCNP (mode « N ») avec fuites exagérées	4	4
Simulation MCNP (mode « N P ») avec bibliothèques Cd modifiées	39	12

Les résultats de simulations sont tous très en deçà du nombre de coups mesurés. Les incertitudes associées sont très importantes, du fait du coût important en temps CPU pour obtenir une statistique acceptable sur la partie du signal étudiée, malgré la réduction de variance par *weight windows*. La mesure montre qu'il faut en moyenne émettre 3.15×10^8 neutrons pour obtenir un seul coup de B DFA dans la zone d'intérêt. Une autre hypothèse, moins évidente car liée à l'activation neutronique et non aux particules promptes, nous a donné des résultats plus représentatifs des mesures réalisées.

- Contribution des neutrons retardés de ^{17}O

Les premières études portant sur la mesure de PFN pour la prospection minière au CEA remontent au début des années 1970. Concernant les mesures qui ont alors été réalisées, une remarque faisant écho à l'analyse du bruit de fond a attiré notre attention : « Dans ce bruit de fond, la contribution de neutrons provenant de la réaction $^{17}\text{O}(n,p)^{17}\text{N}$ n'est probablement pas négligeable, mais ce phénomène ne sera pas discuté au cours de l'expérience. » [78].

L' ^{17}O est un isotope qui a une abondance massique naturelle de l'ordre de 0.04 %, il n'est judicieux d'en tenir compte que lorsque l'environnement de mesure est très oxygéné (eau, silice, oxydes). Le seuil en énergie d'activation de ^{17}O se situe autour de 8.5 MeV, donc uniquement les neutrons rapides en sortie du générateur peuvent être à l'origine de ce phénomène. La réaction d'activation de ^{17}O (3.6) est suivie par la désintégration β^- du produit de réaction ^{17}N (3.7), de période 4.17 s, puis par la désexcitation (3.8) du noyau $^{17}\text{O}^*$ qui, dans 95 % des cas, donne lieu à l'émission d'un neutron rapide (voir tableau 3.10) susceptible d'être mesuré par notre bloc de détection :



TABEAU 3.10 – Rapports d’embranchements de la réaction de désexcitation de $^{17}\text{O}^*$ (3.9) [79].

Particule émise	Énergie (MeV)	Rapport d’embranchement (%)
n	0.386	37.7
n	0.886	0.6
n	1.16	49.8
n	1.69	6.9
γ	0.87	3.7

Sur la figure 3.44, le signal expérimental entre 1250 et 2000 μs semble constant et pourrait être dû à l’accumulation de ce signal neutronique d’activation au fur et à mesure des cycles d’irradiation du générateur, la période radioactive de 4.17 s étant très supérieure à la durée d’un cycle (2 ms).

Le code MCNP ne prend pas en charge les activations neutroniques par défaut et un calcul en deux étapes est nécessaire : dans un premier temps, il convient de calculer le taux de réaction (n,p) dans ^{17}O présent dans les volumes contenant cet élément. Dans un second calcul, il faut utiliser ces derniers comme autant de sources neutroniques secondaires, dont l’activité est pondérée par les taux de réaction calculés et avec la distribution énergétique des neutrons correspondant aux rapports d’embranchement présentés dans le tableau 3.10.

Ce mode de calcul est valide en principe pour des petits volumes car de grosses mailles induisent des biais géométriques, en faisant l’approximation que le taux de réaction est uniforme en leur sein. Cependant, plus le nombre de volumes (et donc de source neutroniques secondaires) est important, plus il faut de temps de calcul pour avoir des incertitudes exploitables. Un compromis doit donc être recherché. Dans un premier temps, nous avons réalisé une simulation en segmentant les éléments de volume proches de la source de neutrons contenant de l’oxygène. Le sable dans le fût de mesure a été découpé en couronnes de 50 cm de hauteur, de 10 cm d’épaisseur, puis 20 cm pour les couronnes extérieures, voir figure 3.45. Il y a donc 36 ($3 \times 3 \times 4$) taux de réactions différents calculés dans le sable, et 2 éléments du générateur contenant de l’oxygène : l’enveloppe d’alumine (Al_2O_3) du tube neutronique scellé et le support de la cible d’hydrure de titane, qui est en oxyde de béryllium (BeO).

Nous pouvons voir sur la figure 3.45 que les volumes qui contribuent le plus au signal simulé sont les éléments dans le générateur (ici les 2 contributions sont sommées pour faciliter la représentation) et la couronne de sable située au plus près de la cible du générateur qui émet les neutrons. Le taux de réaction dans d’autres cellules contenant de l’oxygène ont également été simulés, comme l’air ou les parois de DANAÏDES, mais les éléments contenus dans le fût de mesure représentent à eux seuls 97 % des activations simulées. En considérant que le seuil en énergie pour activer ^{17}O est autour de 8.5 MeV, nous retrouvons approximativement une distribution spatiale de l’activation proportionnelle à $\frac{1}{R^2}$, avec R la distance radiale à la source du générateur. La contribution finale au signal dépend donc de cette distribution spatiale, mais aussi de la distance au compteur ^3He .

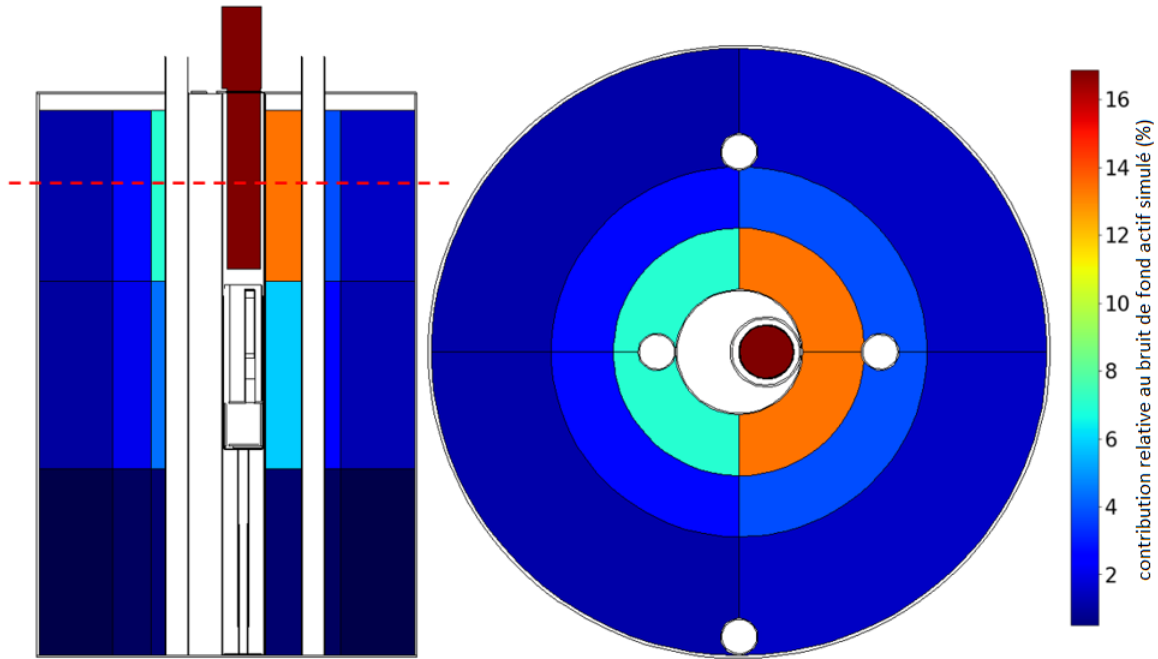


FIGURE 3.45 – Modèle numérique MCNP pour le calcul de taux de réaction d'activation de l' ^{17}O dans le « Tonneau des DANAÏDES ». Coupe transversale (à gauche) et coupe horizontale (à droite, selon la ligne en pointillés rouges), les éléments de volume sont colorés en fonction de leur contribution relative au signal de bruit de fond actif simulé par cette méthode. Réalisé en partie avec MCNP ViSED [23].

Les symétries du dispositif sont bien retrouvées dans les résultats de simulation : le côté où est plaqué le fourreau d'instrumentation est plus activé que l'autre bord et les éléments de part et d'autre de l'axe de décentrage présentent les mêmes contributions relatives. Nous pouvons dissocier les contributions du signal produit suite à l'activation de l' ^{17}O , avec d'une part les 16 % dus aux 20 mg d' ^{17}O situés au voisinage direct de la cible du MEN, où sont produits les neutrons, et d'autre part les 84 % dus aux 340 g d' ^{17}O présents dans le sable (1.6 tonnes). L'ajout d'eau dans la partie centrale du fût simulant le puits de forage, ainsi que dans le sable pour les mesures de porosité, modifiera ces contributions relatives. Pour avoir une estimation plus précise de la contribution du signal produit par l'activation de l' ^{17}O , nous avons redécoupé les éléments de volumes du sable et du générateur respectivement en réseaux de 160 et 99 voxels. La figure 3.46 illustre la transformation des grands éléments de volumes de sable en réseaux avec une maille cubique de 10 cm d'arête.

Nous pouvons voir ici la couronne de sable la plus proche du générateur et qui contribue le plus au bruit de fond actif (environ 13 %). Les points sur les deux coupes représentent l'activité équivalente des différents voxels en fonction de leur taux d'activation respectifs. On constate ainsi un maximum d'activation sur les petits éléments de volume juste en face de la source de neutrons.

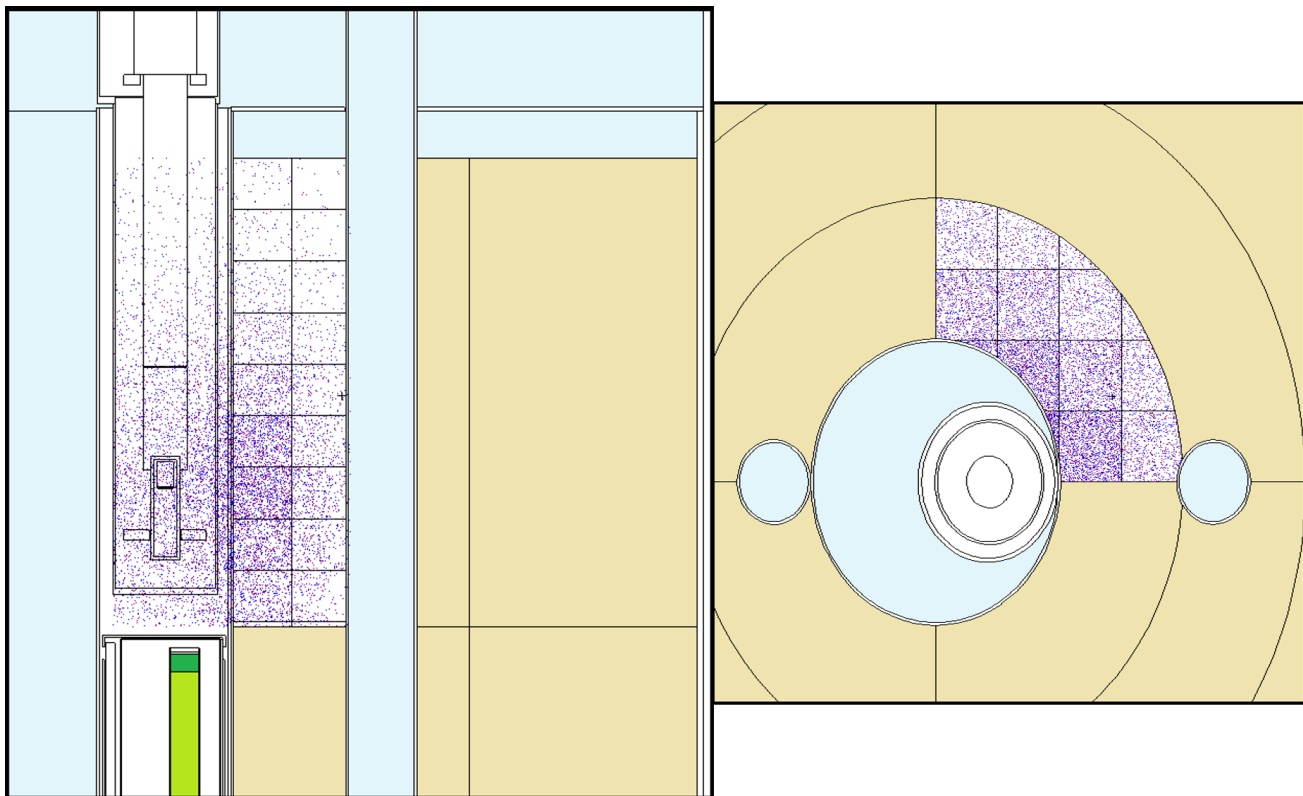


FIGURE 3.46 – Représentations du réseau de sources secondaires permettant le calcul de contribution au bruit de fond actif de l'activation de ^{17}O . Coupe transversale (à gauche) et coupe horizontale (à droite), l'air est représenté en bleu clair, le sable en beige (à l'exception de l'élément de volume émetteur), le compteur ^3He en vert. Réalisées avec MCNP ViSED [23].

Remarque : sur la coupe de gauche de la figure 3.46, les points représentés sur le générateur sont en réalité les projections correspondant à la couronne interne de sable de la coupe de droite.

La somme des contributions de tous les éléments nous donne un signal théorique de 1.56×10^{-8} coups par neutron source, après multiplication par k_{seuilB} . Pour obtenir le signal net théorique produit par l'activation de ^{17}O , il faut multiplier ce résultat par le nombre total de neutrons émis ($7200 \times 7.52 \times 10^6$) et par la fraction du temps sur laquelle nous intégrons le signal du bruit de fond actif (50 %). Au final, nous obtenons un total de $422 (\pm 34)$ coups théoriques pour 2 h de mesure avec une émission moyenne de $7.52 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$, soit environ 2.5 fois plus que les 172 coups mesurés (tableau 3.9). Malgré cette surestimation significative, qui pourrait être liée à la connaissance précise de la quantité et la localisation de ^{17}O , ou à l'incertitude sur la section efficace de la réaction $^{17}\text{O}(n,p)^{17}\text{N}$, ce calcul du bruit de fond actif généré par l'activation neutronique fournit une estimation plus réaliste que ceux basés sur les fuites neutroniques ou les réactions des particules promptes, (n,γ) puis (γ,n) . La figure 3.47 représente le signal produit suite à l'activation de ^{17}O sur les chronogrammes neutroniques simulés et mesurés.

Malgré l'écart entre la mesure et le calcul, nous avons cherché à savoir si l'activation de ^{17}O était bien le phénomène principal responsable du bruit de fond actif. Pour ce faire, nous avons effectué la mesure et ce même calcul d'activation avec le puits central du dispositif rempli d'eau. Cette dernière est, à l'instar du sable, découpée en voxels de 10 cm d'arête, comme le montre la figure 3.46.

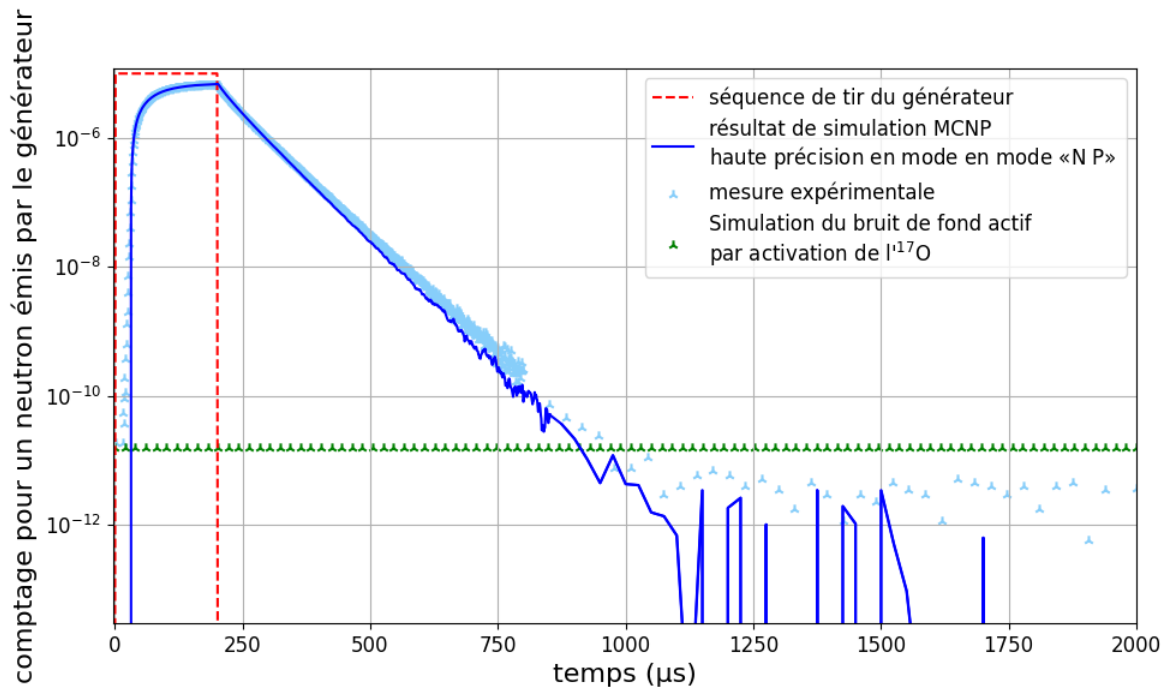


FIGURE 3.47 – Comparaison des chronogrammes neutroniques simulés par MCNP (ligne en bleu foncé), du bruit de fond actif simulé produit par activation de l' ^{17}O (marqueurs verts) et de la mesure (marqueurs bleus clairs). La consigne d'émission du générateur, entre 0 et 200 μs , est représentée en pointillés rouges.

A l'issue du calcul final, nous obtenons un total de 216 (± 15) coups théoriques pour 2 h de mesure avec une émission moyenne de $7.52 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$, soit environ deux fois moins qu'avec un puits central rempli d'air (422 coups). L'expérience correspondante conduit elle à un total de 142 coups, auquel il faut retrancher le bruit de fond passif moyen avec le puits central rempli d'eau, estimé à 55 coups, ce qui porte le bruit de fond actif net à 87 coups, soit deux fois moins que lorsque le puits central est rempli d'air (172 coups). Cet écart relatif similaire (facteur 2 avec ou sans eau) dans la simulation et l'expérience tend à valider la part importante de l'activation de ^{17}O dans le bruit de fond actif, comme le supposait déjà Czubek [78] en 1971.

Remarque : les mesures ont été réalisées de sorte à minimiser les pertes de comptage de l'électronique dues aux forts taux de comptage en début de séquence d'émission neutronique, en diminuant au maximum cette dernière ($7.52 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ en moyenne soit plus de $8 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ pendant l'impulsion, avec un taux de travail de 9 %) en compensant par un temps d'acquisition long (2 h). Ce choix a pour conséquence d'augmenter la contribution relative du bruit de fond passif dans notre bruit de fond total. En pratique, l'émission sera au moins 10 fois plus intense (de l'ordre de 10^8 s^{-1} en moyenne pour les générateurs industriels des sondes minières ou pétrolières) et le bruit de fond passif représentera moins de 5 % du bruit total. Notre estimation du bruit de fond actif par calcul de l'activation de ^{17}O dans un puits de forage sera utilisée dans la suite de ce chapitre pour calculer les limites de détection (LD). Comme elle surestime le bruit expérimental (de l'ordre d'un facteur 2.5), les LD simulées seront un peu majorées (elles sont fonction de la racine carrée du bruit) quant à ce phénomène.

3.4.3 Mesures PFN

Nous pouvons à présent nous intéresser au signal utile, les neutrons prompts des fissions induites sur l'uranium que nous cherchons à mesurer. N'ayant pas la possibilité de faire transporter une tonne de sable uranifère issu de mines ISR, nous avons utilisé un échantillon d'uranium disponible au laboratoire.

- Plaquette d'uranium et support

Nous avons utilisé au cours de nos mesures une plaquette d'uranium métal contenant environ 10 g d'uranium enrichi à plus de 90 % et dont le cœur fissile est protégé par un alliage de zirconium. Le facteur d'autoprotection (atténuation du flux de neutrons interrogateurs au sein de l'échantillon) de ce type de plaquette a été évalué en 1996 à 4.28 [44] et nous avons retrouvé une valeur de 4.27 (± 0.13) en calculant le taux de réaction dans le cœur fissile puis en y remplaçant l'uranium par de l'air (ratio du second taux par le premier). Pour les expériences, nous avons attaché la plaquette sur un support gradué, afin de pouvoir effectuer des mesures en translations verticales et ce dans les différents tubes A, B, C et D présentés en figure 3.39 et 3.40.

- Mesure PFN statique

Pour pouvoir comparer les simulations et les mesures le plus efficacement possible, nous avons choisi comme référence la configuration (α, A) représentée sur la figure 3.48. L'axe de décentrage du détecteur est aligné sur la droite formée par les tubes A et B, le détecteur faisant face à ce dernier. La plaquette d'uranium (en vert clair) est insérée dans le tube A, au plus proche du diamètre interne du dispositif mais de dos par rapport au bloc de détection, c'est à dire à l'opposé du compteur excentré dans le polyéthylène. Dans cette configuration, la cible du générateur, la plaquette d'uranium et le détecteur sont dans le même plan.

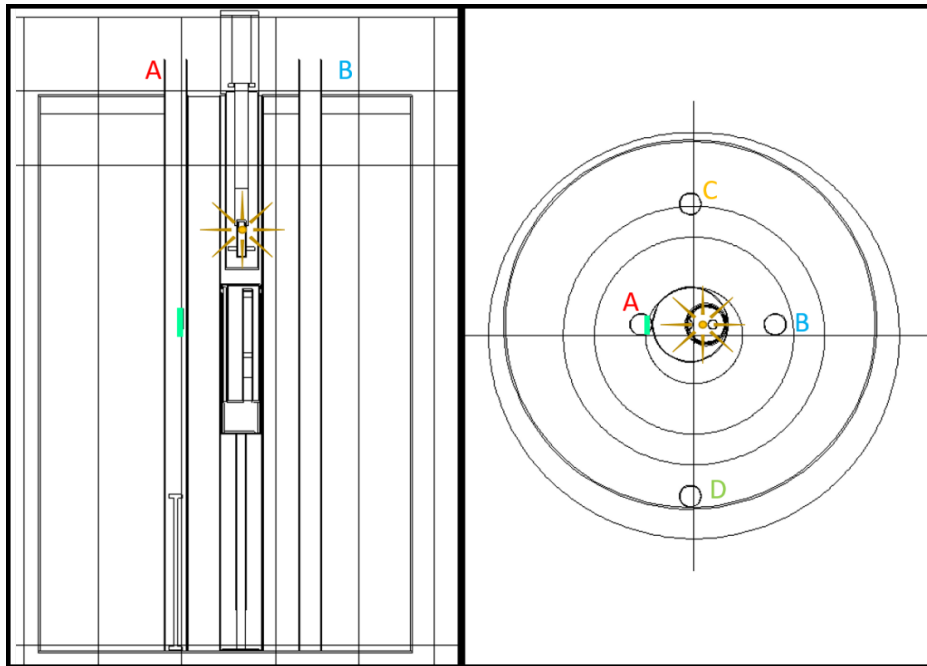


FIGURE 3.48 – Coupes transversale (à gauche) et horizontale (à droite) de la géométrie de référence pour la mesure PFN en statique, réalisées avec MCNP ViSED [23]. La cible du générateur de neutrons (à gauche) et sa projection sur le plan de coupe (à droite) sont représentées par une étoile jaune et la plaquette d'uranium par un rectangle vert clair. Le maillage des fenêtres d'importances (cylindrique décalé, voir texte) est également représenté.

Nous pouvons voir sur la figure 3.48, la plaquette sur laquelle nous avons superposé un rectangle vert clair pour la mettre en évidence. Son centre se trouve à 45 cm au-dessus du support posé au fond du tube A. À cette hauteur, nous avons mesuré expérimentalement l'amplitude maximale du signal utile. Comme pour les simulations PFN réalisées pour le chapitre 2, il est nécessaire de faire appel à une méthode de réduction de variance. Nous avons donc ici aussi utilisé les fenêtres d'importances de MCNP, dont le maillage est représenté sur la figure 3.48. Ce dernier est cylindrique mais légèrement décentré par rapport à la géométrie du dispositif de mesure, afin de ne pas systématiquement couper la plaquette et le compteur ^3He , limitant ainsi le risque d'artefacts de calcul.

Nous avons réalisé une mesure de 2 heures dans la configuration présentée précédemment, avec une émission neutronique moyenne de $7.52 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$. La séquence de tir du générateur est toujours de 200 μs pour une durée de répétition de 2 ms, mais le retard à l'amorçage de 20 μs réduit le taux de travail à 9 %. Le signal intégré est de 1873 coups entre 1000 et 2000 μs après le début de la séquence d'émission du générateur. La figure 3.49 représente les chronogrammes neutroniques expérimentaux correspondant à cette acquisition et à la mesure de bruit de fond actif présenté dans la section précédente. Les résultats des simulations correspondantes sont également tracés sur le graphique, le bruit de fond actif simulé est celui calculé en mode « N P ».

Remarque : Il conviendrait de choisir un maillage de fenêtre d'importance plus fin pour vraiment optimiser les calculs avec des anomalies quasi ponctuelles. Dans le cas d'un environnement homogène avec des variations paramétriques comme présenté dans le chapitre 2, un maillage unique pour l'ensemble des cas de figures peut être pertinent.

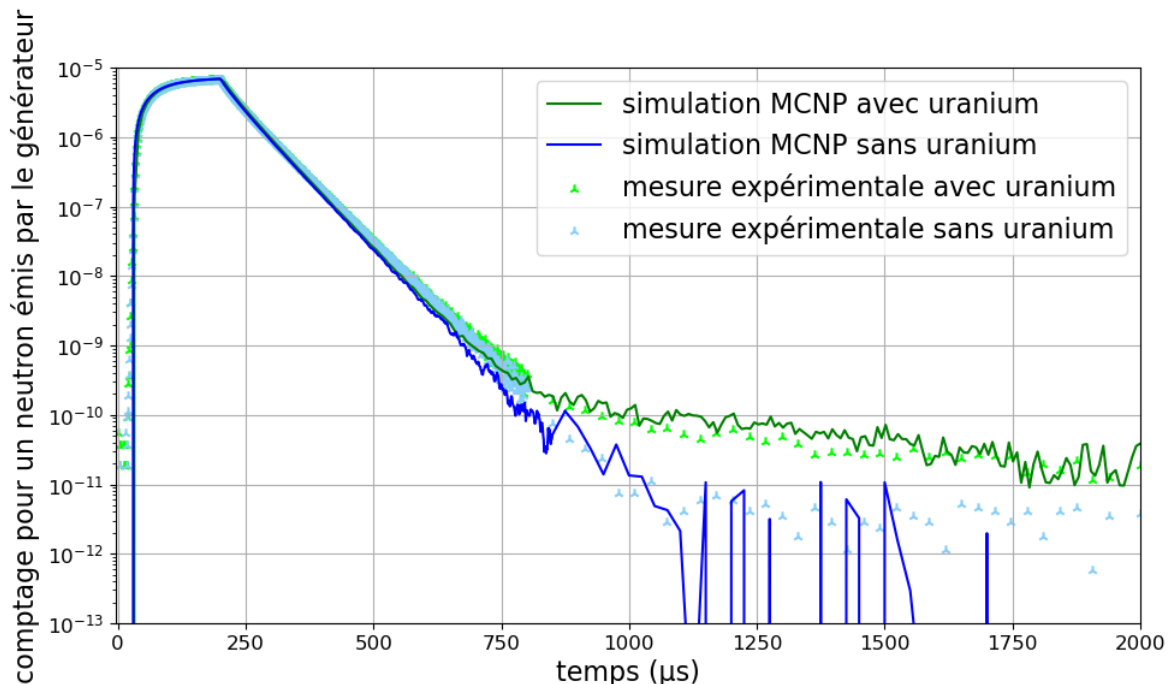


FIGURE 3.49 – Comparaison des chronogrammes neutroniques simulés par MCNP (lignes), et mesurés expérimentalement (marqueurs) avec et sans uranium (respectivement en vert et en bleu).

Nous pouvons voir sur la figure 3.49 que le signal PFN (en vert) sort nettement du bruit de fond à partir de 750 μs après le début de la séquence de tir. Les chronogrammes simulés et mesurés présentent une amplitude et une décroissance similaire. On pourra noter que les résultats de simulations décroissent légèrement plus vite que les mesures, ce qui peut être interprété comme une surestimation de l'absorption des neutrons thermiques. Le signal PFN est supérieur au bruit de fond actif d'un facteur 10 à partir de 1000 μs après le début de la séquence de tir.

Nous avons calculé les intégrales dans la zone d'intérêt (1000 à 2000 μs) et regroupé les résultats dans le tableau 3.11. Afin de pouvoir comparer le signal PFN simulé avec la mesure, il faut calculer sa contribution nette. Expérimentalement, nous retranchons le bruit de fond total au signal intégré dans la zone d'intérêt. Au niveau de la simulation, il faut soustraire le bruit de fond établi avec le calcul long en mode « N P » au résultat de simulation avec l'uranium (et non celui plus réaliste dû à l'activation de ^{17}O car le calcul du signal utile n'inclut pas ce bruit d'activation).

TABLEAU 3.11 – Comparaison expérience/calcul des comptages observés sur la zone d'intérêt (1000 à 2000 μs) lors de la mesure de la plaquette en uranium en position statique devant le compteur, pour une émission moyenne de $7.52 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ pendant 7200 s.

	Comptage expérimental	Incertitude expérimentale	Comptage simulé	Incertitude de simulation
Nombre de coups sans uranium (bruit de fond)	218	15		
Nombre de coups sans uranium (bruit de fond net)	172	18	39	12
Nombre de coups avec uranium	1873	43	2583*	112
Nombre de coups avec uranium (signal PFN net)	1655	61	2544*	124

* Après multiplication par $k_{seuilB} = 0.58$

Le comptage prédit par MCNP, et associé au signal PFN net, surestime d'un facteur 1.5 nos résultats de mesure. Quelques parties par million d'absorbants neutroniques, présents naturellement dans le sable et n'ayant pas été simulés, peuvent expliquer un tel écart. Nous restons cependant dans le même ordre de grandeur, comme vu précédemment sur la figure 3.49.

Nous avons commandé, au laboratoire d'analyse chimique du CIME (ORANO), une analyse destructive par spectrométrie de masse couplée à un plasma inductif (ICP-MS). Nous avons donc envoyé un échantillon de 50 cm^3 de sable provenant de notre dispositif expérimental et une liste d'éléments à mesurer, principalement de forts absorbants neutroniques. Le tableau 3.12 synthétise les résultats de mesure reçus en septembre 2023.

TABLEAU 3.12 – Résultat d'analyse destructive (ICP-MS) des absorbants neutroniques retrouvés dans le sable de l'expérience.

Elément	Numéro atomique (Z)	Teneur*	Unité
Li	3	3.42	mg.kg ⁻¹ (ppm)
B	5	3.06	mg.kg ⁻¹ (ppm)
Sm	62	159	μg.kg ⁻¹ (ppb)
Gd	64	141	μg.kg ⁻¹ (ppb)
Dy	66	107	μg.kg ⁻¹ (ppb)
Hf	72	272	μg.kg ⁻¹ (ppb)
U	92	<1	mg.kg ⁻¹ (ppm)

* Toutes les incertitudes de cette mesure sont de 10 % d'après le CIME.

La mesure d'uranium naturellement présent dans notre sable par spectrométrie γ nous avait donné un résultat de 1.6 ppm_U (± 0.8) est compatible avec la limite de détection de l'ICP-MS (< 1 ppm_U). Nous avons donc modélisé une nouvelle fois le sable de l'expérience en tenant compte de ces absorbants neutroniques et nous obtenons un signal plus proche de celui mesuré expérimentalement, comme le montre la figure 3.50.

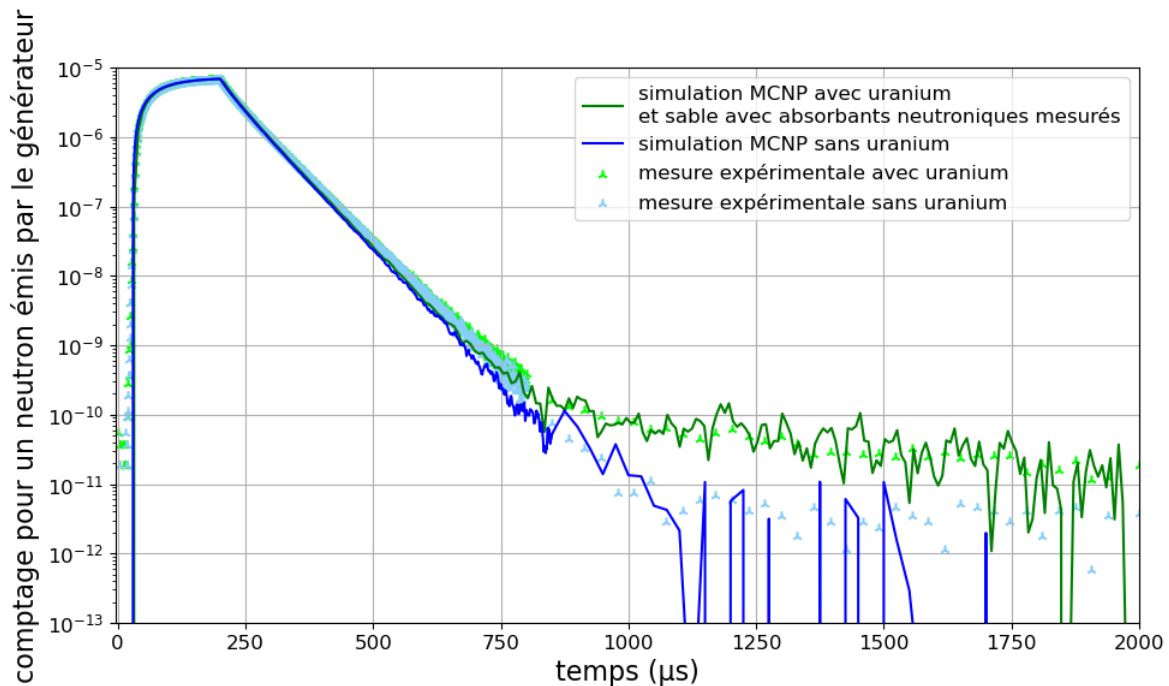


FIGURE 3.50 – Comparaison des chronogrammes neutroniques simulés par MCNP (lignes continues), en tenant compte des absorbants neutroniques, et mesurés expérimentalement (marqueurs), avec et sans uranium (respectivement en vert et en bleu).

La figure 3.50 reprend les courbes correspondants aux expériences de la figure 3.49, ainsi que la simulation MCNP en mode « N P » qui sert de référence dans ce chapitre. La nouvelle courbe simulée est représentée en ligne verte. Elle est plus bruitée que dans le calcul précédent, mais son niveau moyen est légèrement plus faible. Afin de pouvoir analyser quantitativement les résultats, le comptage intégré sur la plage d'intérêt (de 1 à 2 ms après le début de la séquence de tir) est donné dans le tableau 3.13, qui est la mise à jour du tableau 3.11 avec le résultat de la simulation comprenant les absorbants neutroniques mesurés dans notre sable. La surestimation du nombre de coups mesuré expérimentalement par la simulation passe de 50 % à 25 % et les résultats sont désormais compatibles à 2 écarts types.

TABLEAU 3.13 – Comparaison expérience/calcul des comptages observés sur la zone d'intérêt (1000 à 2000 μs) lors de la mesure de la plaquette en uranium en position statique, en tenant compte des absorbants neutroniques dans le sable, pour une émission moyenne de $7.52 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ pendant 7200 s.

	Comptage expérimental	Incertitude expérimentale	Comptage simulé	Incertitude de simulation
Nombre de coups sans uranium (bruit de fond)	218	15		
Nombre de coups sans uranium (bruit de fond net)	172	18	39	12
Nombre de coups avec uranium	1873	43	2156*	146
Nombre de coups avec uranium (signal PFN net)	1655	61	2117*	158

* Après multiplication par $k_{seuilB} = 0.58$

- Mesures de PFN en translation

Toujours dans la configuration (α, A) de la figure 3.48, nous avons réalisé des mesures en tradant verticalement la plaquette d'uranium dans les différents tubes pour valider expérimentalement les diagraphies du signal PFN prédites par MCNP. Les acquisitions ont été réalisées tous les 5 cm, sur des durées de 10 minutes, mais avec une émission moyenne plus élevée de $7.8 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$. Le nombre intégré de neutrons émis par le générateur est donc proche (86 %) des mesures longues présentées précédemment (2 h à $7.52 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$). L'incertitude du positionnement relatif de la plaquette entre la simulation et l'expérience est de l'ordre de 2 cm, nous avons donc sur-échantillonné les simulations à raison d'un calcul tous les 2.5 cm, pour pouvoir recaler les profils verticaux si nécessaire.

La figure 3.51 montre la comparaison des profils verticaux mesurés et simulés (sans les absorbants neutroniques). L'axe des ordonnées correspond à la distance relative entre le sommet de la cale, surélevant le support gradué sur lequel est attachée notre plaquette d'uranium, et le centre de cette dernière. L'axe des abscisses représente le nombre total de coups enregistrés ou simulés dans la fenêtre temporelle d'intérêt (entre 1 et 2 ms).

Nous pouvons voir sur la figure 3.51 que les deux profils présentent une forme similaire. Les amplitudes respectives ne sont cependant pas compatibles et leur maximum semblent légèrement décalés. Afin de mieux pouvoir les comparer, il faut soustraire le bruit de fond de chaque courbe. A l'aide des résultats obtenus en partie 3.4.2, il est possible de calculer les contributions des bruits de fond expérimentaux. Pour chaque point de mesure nous avons relevé le temps de mesure ($t_{acquisition}$) correspondant et le comptage total du moniteur externe ($n_{moniteur\ externe}$), permettant ainsi de remonter à l'émission neutronique totale.

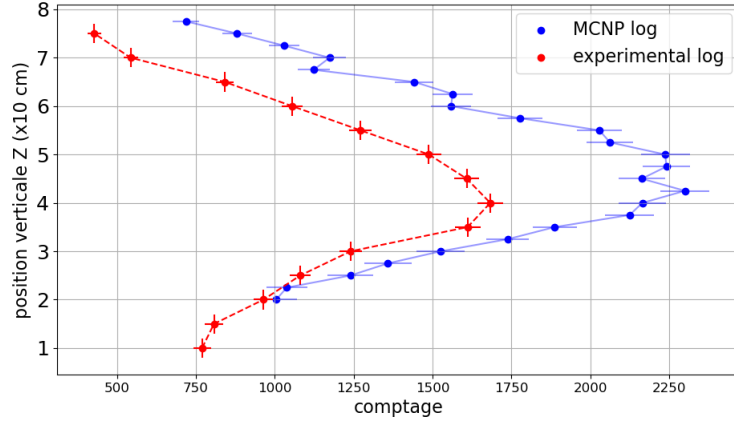


FIGURE 3.51 – Comparaison de l'évolution des taux de comptage, intégrés entre 1 et 2 ms après le début du tir, en fonction de la position verticale de la plaquette d'uranium. Les simulations sont en bleu et les mesures expérimentales en rouge.

Le bruit de fond expérimental est alors calculé avec l'équation (3.9) :

$$bdf = t_{acquisition} \times 6.45 \times 10^{-3} + n_{moniteur\ externe} \times k_{etalonnage\ 2} \times \frac{1}{3.15 \times 10^8} \quad (3.9)$$

Avec $k_{etalonnage\ 2} = 44.3 \times 10^3$

Pour une acquisition avec une émission moyenne de $7.8 \times 10^7\ s^{-1}$ pendant 10 minutes, la contribution du bruit dans le comptage est alors de 152 coups. Nous pouvons retrancher les valeurs réelles, point par point, à nos mesures et soustraire également 34 coups de bruit de fond aux simulations. Nous avons décidé de décaler les points correspondant aux simulation de 2.5 cm, ce qui correspond à l'incertitude sur le positionnement de l'échantillon d'uranium. Pour finir, nous avons divisé tous les comptages simulés par 1.5, écart que nous avons observé dans le tableau 3.11. Le profil ayant été calculé en l'absence d'absorbants neutroniques dans le sable simulé, nous devrions toujours avoir ce facteur entre expérience et simulation. L'ensemble de ces changements sont appliqués à la figure 3.51 pour obtenir la figure 3.52.

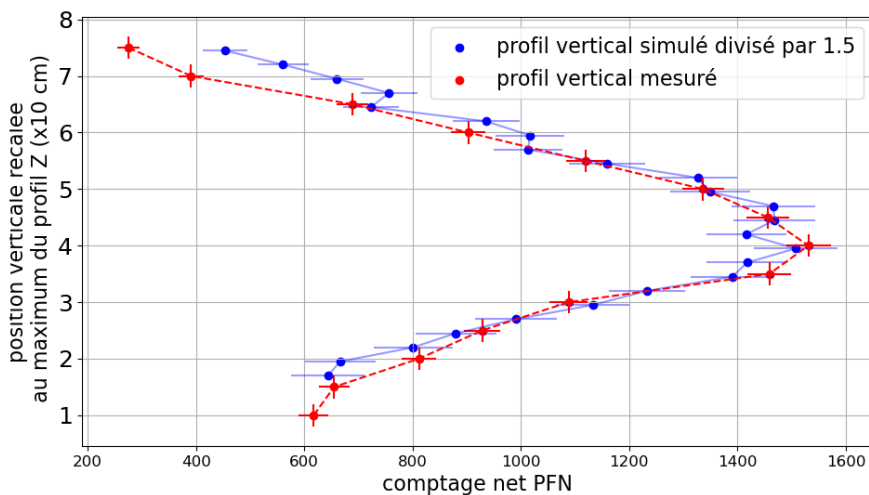


FIGURE 3.52 – Comparaison de l'évolution des taux de comptage net liés aux PFN, intégrés entre 1 et 2 ms après le début du tir, en fonction de la position verticale recalée de la plaquette d'uranium. Les comptages nets simulés ont été divisés par un facteur 1.5.

Nous pouvons voir sur la figure 3.52 que les deux profils recalés et sans bruit de fond se superposent bien, après application du facteur 1.5 sur toutes les simulations. Nous confirmons ainsi la réponse spatiale de la simulation de notre sonde maquette à la translation d'un échantillon quasi ponctuel d'uranium. Suite aux résultats d'analyse du CIME et à l'ajout d'absorbants neutroniques dans le modèle numérique du sable, nous avons relancé quelques simulations. La statistique est un peu moins bonne, et nous n'avons réalisé qu'un point tous les 5 cm, comme pour les mesures, comme nous pouvons le voir sur la figure 3.53.

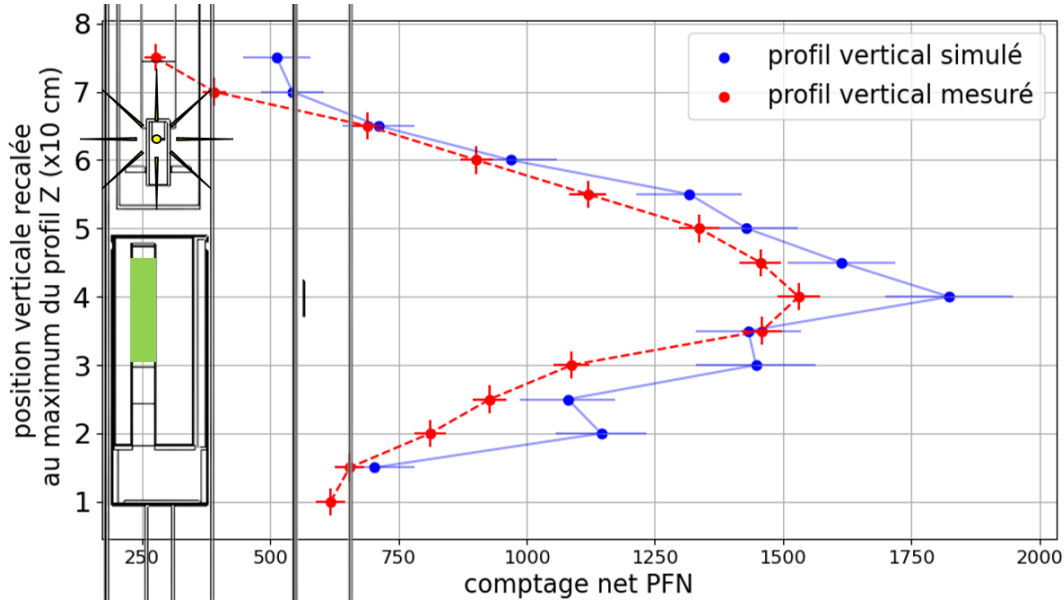


FIGURE 3.53 – Comparaison de l'évolution des taux de comptage net liés aux PFN, intégrés entre 1 et 2 ms après le début du tir, en fonction de la position verticale recalée de la plaquette d'uranium et en tenant compte des absorbants neutroniques dans le sable.

Sur la figure 3.53, nous avons effectué les mêmes opérations de recalage géométrique (de 2.5 cm) et de soustraction de bruit de fond que précédemment, mais pas le facteur correctif 1.5 et nous pouvons voir que l'ordre de grandeur des comptages nets simulé correspondant au signal PFN est correct pour chaque position. Les comptages expérimentaux et simulés sont ici compatibles à 2 écarts types (les barres d'erreur sur la figure sont à un écart type).

Il serait intéressant de relancer des simulations pour plus de points et avec un temps de calcul plus long pour valider quantitativement les résultats. Cependant, il ne sera jamais possible, en pratique, de mesurer finement la composition du sable mesuré dans les puits de forage. La validation du profil spatial, à une constante près liée à la présence d'absorbants neutroniques, est donc plus représentative de la problématique industrielle. Elle traduit la réponse à un échantillon quasi ponctuel d'uranium (comme une pépite) et constitue une fonction de sensibilité spatiale similaire à celles utilisées dans le domaine des sondes pétrolières [55], qui montre que le maximum de sensibilité est obtenu devant le compteur. On peut le voir sur la figure 3.53, qui superpose la géométrie simulée, et les réponses mesurées et simulées.

Remarque : Dans les milieux naturels, les pépites d'uranium forment des conglomérats souvent riches en terres rares, dont le gadolinium. Il serait pertinent de mesurer ainsi l'effet d'une anomalie d'uranium associée à une forte concentration de cet absorbant neutronique.

3.4.4 Mesures avec puits en eau

- Effets de l'eau dans le centre du dispositif sur le signal rétrodiffusé

Les mesures en forage s'effectuant généralement avec de l'eau dans le puits, il est primordial de vérifier que les résultats de simulation soient cohérents avec la mesure quand nous mettons de l'eau dans le puits central de notre fût étalon. Une bonne simulation de l'effet de l'eau dans le puits permet aussi une première validation de la méthode de mesure de porosité hydrogène ; l'eau au voisinage de la sonde affecte le signal rétrodiffusé de façon similaire à l'eau dans les pores. La figure 3.54 montre les simulations de bruit de fond actif réalisées avec et sans eau dans le centre du dispositif de mesure. Nous avons également représenté la composante liée à l'activation de ^{17}O calculée en partie 3.4.2.

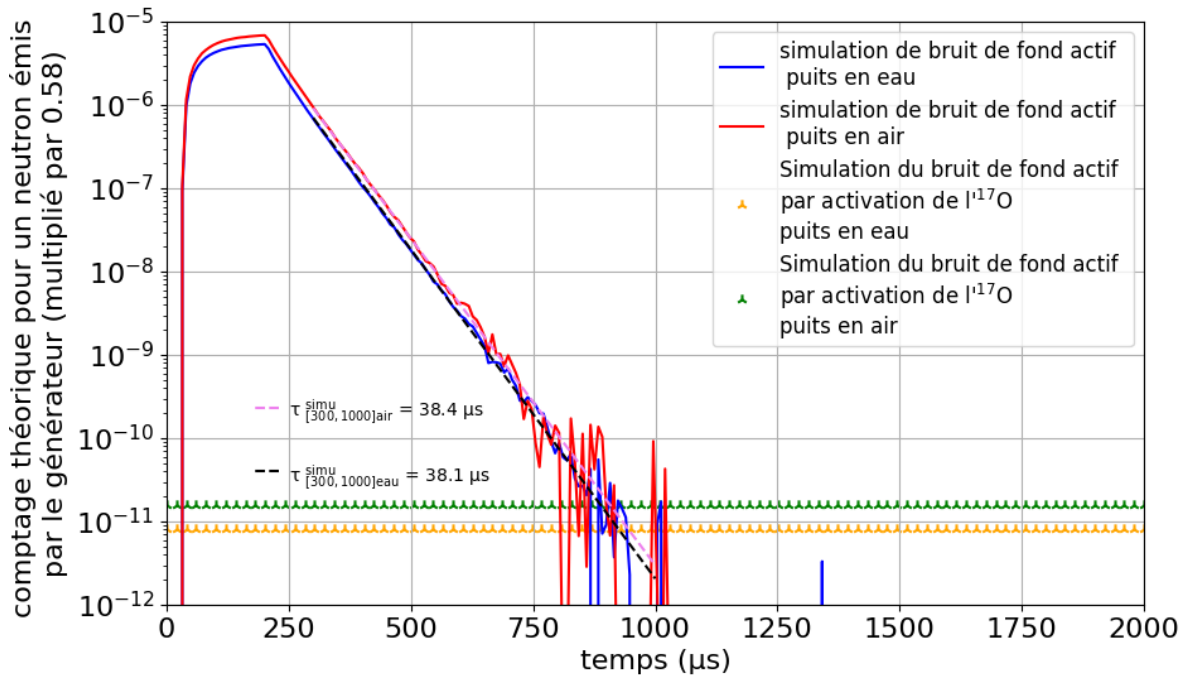


FIGURE 3.54 – Comparaison des chronogrammes neutroniques simulés sans uranium, avec et sans eau dans le puits central du dispositif de mesure. Les contributions simulées du signal produit par activation de l'oxygène 17 sont représentées avec les marqueurs jaunes et verts (droites continues à cette échelle de temps).

Nous voyons sur la figure 3.54 que les courbes avec et sans eau sont parallèles entre 0 et 700 μs après le début du tir, aux fluctuations statistiques près. On peut estimer un facteur d'atténuation dû à l'eau $k_{\text{atténuation eau du puits}}^{\text{MCNP}} = 1.28$. La partie liée au signal d'activation de ^{17}O apparaît comme constante sur la zone d'intérêt de la mesure PFN, entre 1 et 2 ms après le début du tir. En effet, elle correspond à un signal qui s'accumule et devient constant après quelques dizaines de secondes de mesure pulsée ; à chaque tir du générateur, des noyaux de ^{17}N sont créés tandis que d'autres décroissent en permanence avec une période de 4.17 s, le pallier étant atteint après environ 6 périodes. De plus, le rapport entre les composantes simulées de bruit de fond est de 1.96.

Nous pouvons comparer ces résultats avec des mesures de bruit de fond actif réalisées à basse émission moyenne ($< 10^7 \text{ s}^{-1}$) pour limiter au maximum les effets liés au temps mort. Le taux de comptage instantané mesuré pendant les impulsions du générateur est alors de l'ordre de 10^5 s^{-1} .

Remarque : on peut calculer cette dernière valeur à partir du maximum de la courbe rouge de la figure 3.55, connaissant la segmentation de $1 \mu\text{s}$ par canal, l'émission moyenne indiquée de $7.45 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ et la fréquence des tirs qui est de 500 Hz .

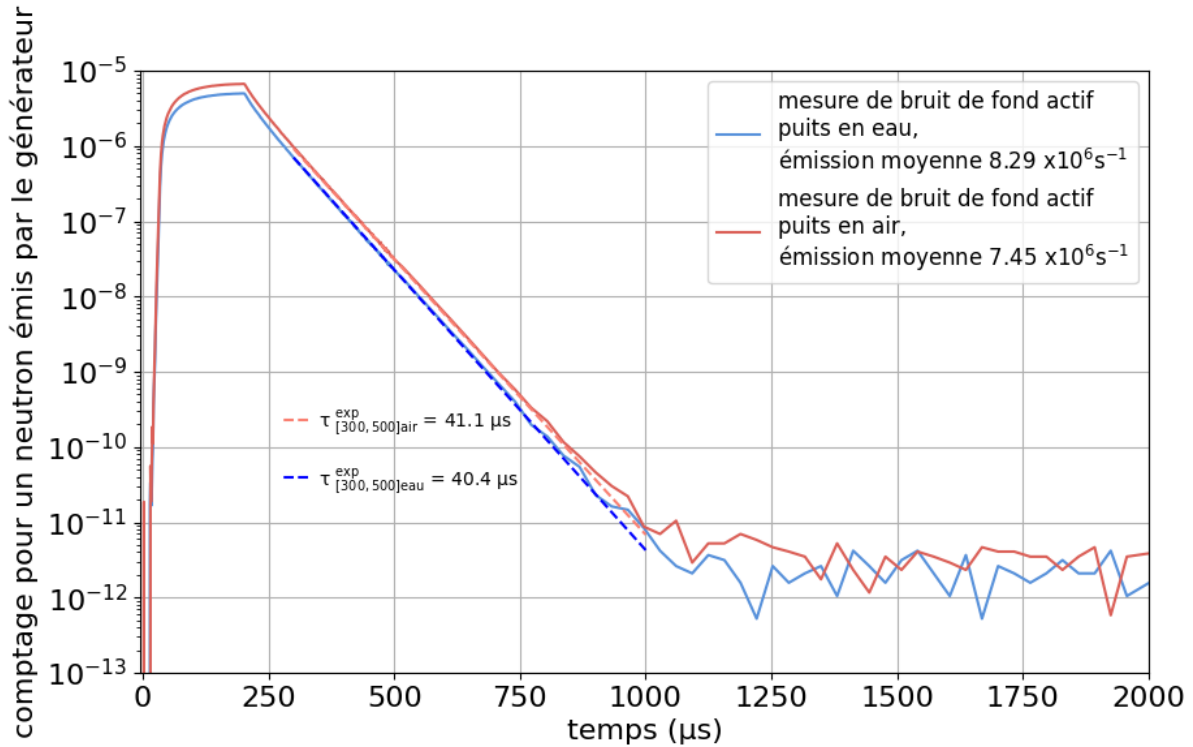


FIGURE 3.55 – Comparaison des chronogrammes neutroniques mesurés sans uranium, normalisés à un neutron émis grâce au signal du moniteur externe, avec et sans eau dans le puits central du dispositif de mesure. Les canaux sont regroupés à partir de $850 \mu\text{s}$ pour limiter les fluctuations statistiques et permettre ainsi une meilleure lisibilité (au début $1 \text{ canal} = 1 \mu\text{s}$, puis après $850 \mu\text{s}$, $1 \text{ canal} = 32 \mu\text{s}$).

Sur la figure 3.55 nous pouvons voir la comparaison entre les chronogrammes neutroniques mesurés sans uranium avec et sans eau dans le puits central du dispositif. Là aussi, nous constatons que les courbes sont parallèles, avec un coefficient d'atténuation $k_{\text{atténuation eau du puits}}^{\text{mesure}} = 1.35$ du même ordre de grandeur que le coefficient $k_{\text{atténuation eau du puits}}^{\text{MCNP}} = 1.28$ de la simulation. Comme dans la partie 3.4.2 lors des comparaisons entre les chronogrammes simulés et mesurés, on observe une différence sur les temps de décroissance des signaux rétrodiffusés d'environ $3 \mu\text{s}$, soit 8% d'écart relatif. En revanche, l'ajout d'eau dans le puits central du dispositif ne change pas significativement cette pente, que ce soit dans les chronogrammes neutroniques simulés ou mesurés.

Remarque : L'atténuation sur les chronogrammes neutroniques simulés et mesurés, de l'ordre de 30% , est très marquée, mais également homogène. A l'inverse les constantes de temps des signaux rétrodiffusés varient peu en présence d'eau. L'effet de cette dernière sur le signal neutron non thermalisé s'apparente à celui d'un écran absorbant le flux interrogateur.

L'ajout d'une grande quantité d'hydrogène dans le dispositif de mesure agit sur le signal intégré sur la fenêtre W_H qui a été optimisée pour la mesure de porosité hydrogène. Par analogie avec le régime impulsionnel choisi dans le chapitre 2, tirs de durée $50 \mu\text{s}$ séparés par 5 ms , la fenêtre W'_H expérimentale commence $30 \mu\text{s}$ après la fin de la bouffée neutronique et dure $270 \mu\text{s}$. L'intégration se fait donc ici entre 230 et $500 \mu\text{s}$ après le début du tir du générateur. Nous avons représenté W'_H sur la figure 3.56, ainsi que différents chronogrammes neutroniques mesurés pour différents taux d'émission moyens pour étudier la faisabilité pratique jusqu'à des taux proches de l'application finale (10^8 s^{-1}), avec et sans eau dans le puits central du dispositif de mesure. Les lignes en couleurs chaudes (orange foncé et doré) correspondent aux mesures réalisées avec de l'eau dans le puits central, les mesures correspondant aux acquisitions avec de l'air sont représentées avec des couleurs plus froides (bleu clair, indigo, violet).

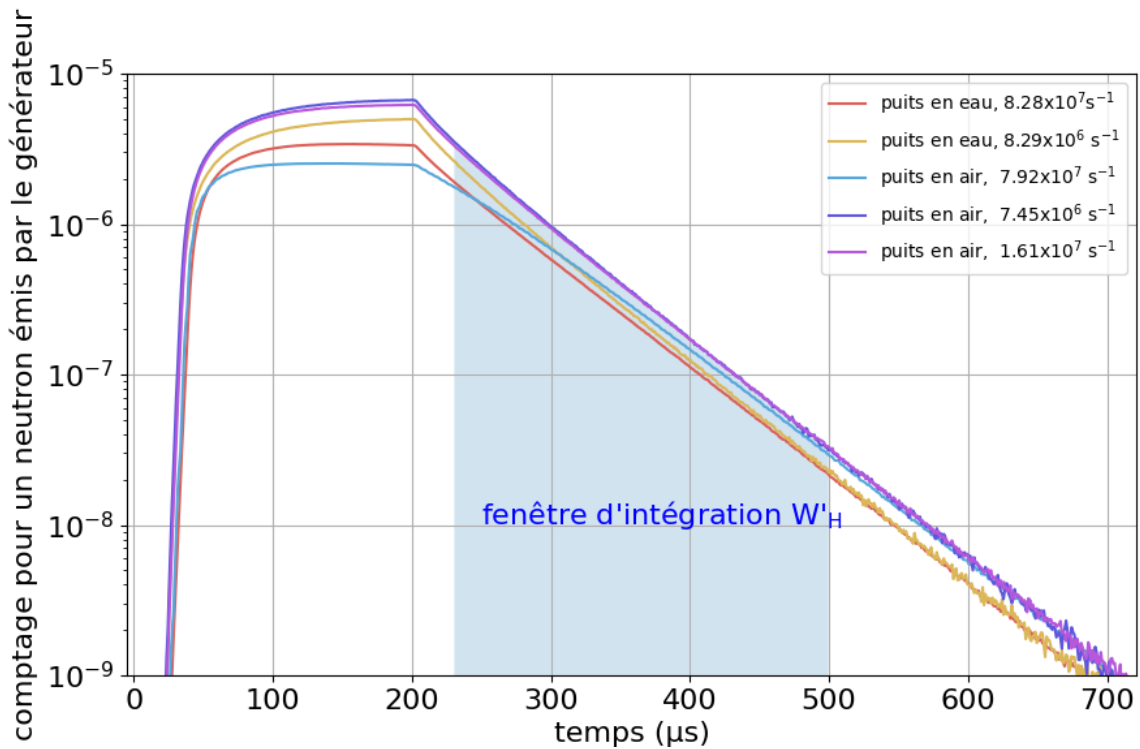


FIGURE 3.56 – Comparaison des signaux neutroniques mesurés après le tir du générateur, normalisés par l'émission neutronique totale, pour différentes émissions neutroniques moyennes, avec et sans eau dans le puits central du dispositif de mesure.

Pendant le tir du générateur, nous voyons que la courbe en bleu clair, correspondant à l'émission la plus forte, subit de fortes pertes de comptage (environ 40 %) par rapport aux deux autres courbes avec le puits en air, de plus, son aspect semble très saturé par rapport à ces dernières (plateau). La récupération se fait un peu plus tardivement (vers $650 \mu\text{s}$, soit $450 \mu\text{s}$ après l'arrêt du tir) que pour la courbe orange (vers $550 \mu\text{s}$ soit $350 \mu\text{s}$ après le tir), elle aussi affectée par du temps mort.

Remarque : Cette fenêtre de mesure nécessite que l'électronique ait complètement récupéré du tir la précédant. À défaut, le signal devra être corrigé des pertes de comptages liées au temps mort en temps réel.

- Effets de l'eau dans le puits sur le signal PFN

Nous comparons ici les effets simulés et mesurés de l'eau dans le puits central du dispositif, sur la partie du signal neutronique d'intérêt pour la mesure de teneur en uranium (entre 1 et 2 ms après le début du tir). Le cas étudié ici correspond à la géométrie de mesure (α, A) de la figure 3.48, déjà étudiée au paragraphe 3.4.3, lorsque la plaquette d'uranium est en face du détecteur, position où le signal mesuré est maximum ($Z = 40$ cm dans les figures 3.51 ou 3.52). La figure 3.57 représente les simulations réalisées avec et sans eau dans le centre du dispositif, en tenant compte des absorbants neutroniques (B, Li, Gd, ...) dans le sable.

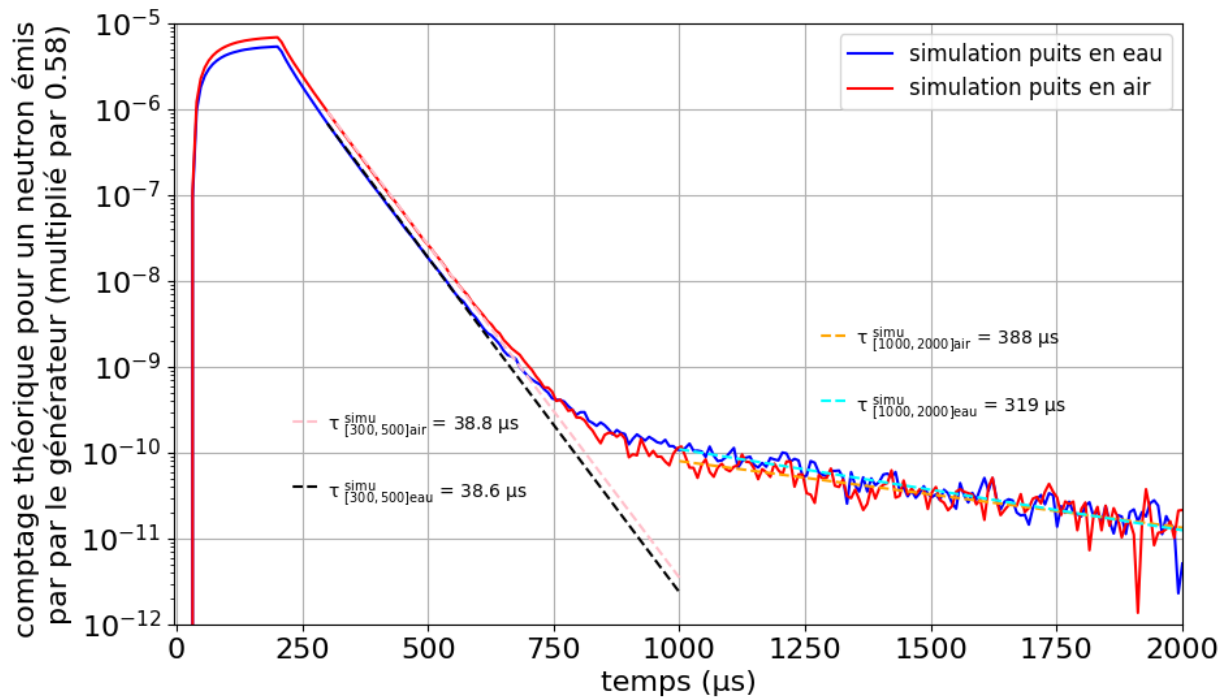


FIGURE 3.57 – Comparaison des chronogrammes neutroniques simulés avec la géométrie de la figure 3.48, avec et sans eau dans le puits central du dispositif de mesure

Comme précédemment pour les mesures sans uranium, les courbes avec et sans eau sont parallèles jusqu'à environ $700 \mu s$ après le début du tir, aux fluctuations statistiques près. Le facteur d'atténuation dû à l'eau reste identique à celui des simulations réalisées sans la plaquette d'uranium (figure 3.54) ($k_{att\u00e9nuation\ eau\ du\ puits}^{MCNP} = 1.28$). La seule différence observable est une très légère augmentation des pentes de décroissance du signal rétrodiffusé par rapport aux simulations réalisées sans uranium, où elles étaient de $38.4 \mu s$ (puits en air) et $38.1 \mu s$ (en eau), voir figure 3.54, contre respectivement $38.8 \mu s$ et $38.6 \mu s$ ici, soit de l'ordre de 1 à 1.5 % d'écart relatif.

Par contre, après $1000 \mu s$, les pentes de décroissance des deux droites correspondant au signal PFN montrent une différence significative en présence d'eau dans le puits central du dispositif de mesure, le flux de neutrons thermiques interrogateur décroissant plus rapidement ($319 \mu s$ contre $388 \mu s$ sans eau) d'après la simulation.

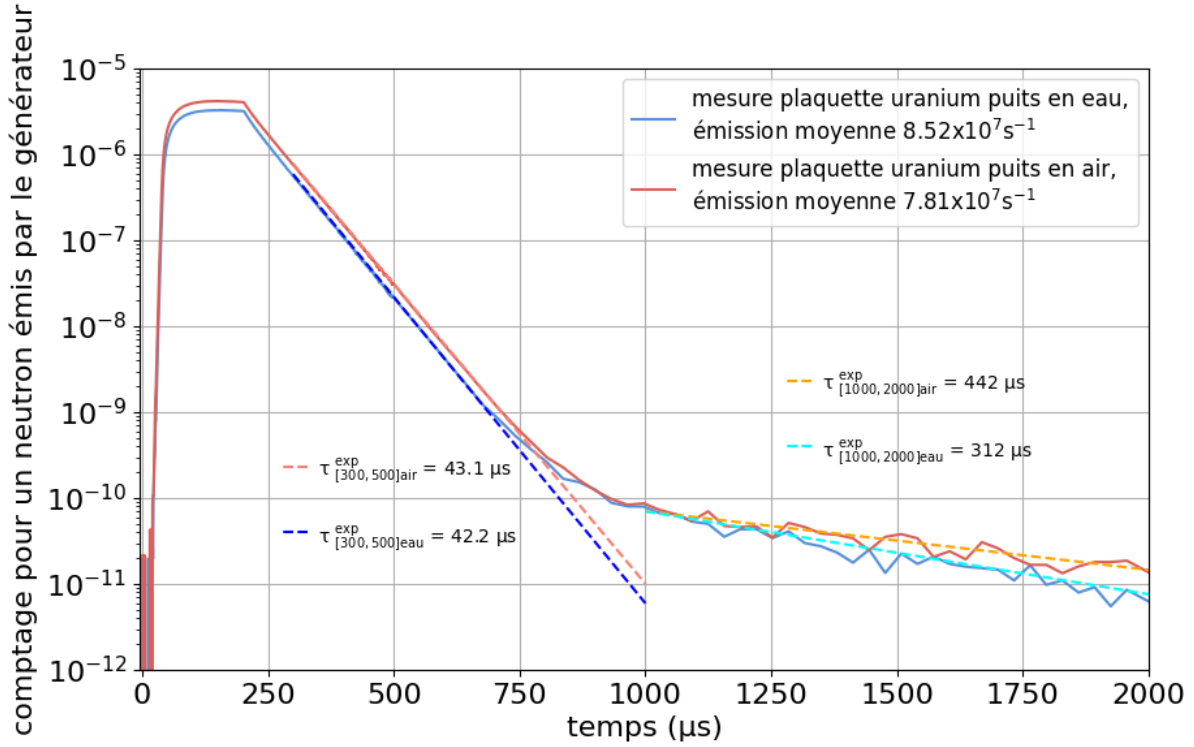


FIGURE 3.58 – Comparaison des chronogrammes neutroniques mesurés avec uranium, normalisés à un neutron émis grâce au signal du moniteur externe, avec et sans eau dans le puits central du dispositif de mesure. Les canaux sont regroupés à partir de 850 μs pour limiter les fluctuations statistiques et permettre ainsi une meilleure lisibilité (au début 1 canal = 1 μs , puis après 850 μs , 1 canal = 32 μs).

Sur la figure 3.58, nous pouvons voir la comparaison entre les chronogrammes neutroniques mesurés avec la plaquette d'uranium, avec et sans eau dans le puits central du dispositif. Là aussi, nous constatons que les courbes sont parallèles, avec le même coefficient d'atténuation $k_{\text{atténuation eau du puits}}^{\text{mesure}} = 1.35$ que celui observé lors des mesures sans uranium (figure 3.55). La mesure de porosité hydrogène n'est donc pas influencée par la présence d'uranium. Comme pour les simulations, la pente de décroissance du signal rétrodiffusé semble augmenter très légèrement par rapport aux mesures sans uranium, voir figure 3.55. Elle passe de 41.1 à 43.1 μs (puits en air) et de 40.4 à 42.2 μs (en eau), soit une augmentation relative de 4.5 à 5 % environ, légèrement plus grande que pour les simulations.

Dans la zone de la mesure de la teneur en uranium (entre 1 et 2 ms après le début du tir), la différence de vitesse de décroissance des signaux PFN avec et sans eau dans le puits, avec des constantes respectives de 312 μs et 442 μs , est un peu plus marquée que dans la simulation. Dans cette dernière, les constantes étaient respectivement de 319 μs et 388 μs . La simulation du dispositif en air (fût métallique, sable, générateur de neutrons, bloc de détection, plaquette d'uranium) semble donc satisfaisante en termes de décroissance du flux thermique interrogateur (442 vs. 388 μs), comme déjà observé dans la partie 3.4.3 (figure 3.49). Toutefois, la simulation surestime le signal PFN, dont l'intégrale est plus grande que pour l'expérience avec 2.33×10^3 contre 1.22×10^3 coups, soit une surestimation d'un facteur 1.9. Cette dernière est plus importante qu'avec le puits en air, où l'intégrale du signal PFN simulée était de 1.75×10^3 coups contre 1.46×10^3 coups pour la mesure, soit un facteur 1.2. On observe donc une diminution du signal PFN quand on remplit le puits en eau dans l'expérience (on passe de 1.46×10^3 à 1.22×10^3 coups) mais une augmentation surprenante par simulation (de 1.75×10^3 à 2.33×10^3 coups).

Nous avons fait varier par calcul MCNP la densité de l'eau entre 0.9 et 1.1, pour simuler une sous-estimation et une surestimation de la quantité d'eau (bien que la masse d'eau introduite expérimentalement dans le puits corresponde bien à celle simulée, 30.6 contre 31.7 kg). Nous avons aussi testé par calcul différentes densités du polyéthylène entourant le compteur (0.94 pour du PE haute densité contre 0.91 pour du PE standard), une diminution de la pression de remplissage en ^3He du compteur (de 6 à 4 bar car il est très ancien), l'ajout de zones d'air entre ce dernier et le polyéthylène. Néanmoins, aucun de ces essais n'a conduit à une modification significative de la pente de décroissance du signal PFN simulé ni à son intégrale. De plus, nous avons utilisé différentes options de calcul MCNP, comme les bibliothèques $S(\alpha,\beta)$ tenant compte des effets moléculaires sur le transport des neutrons thermiques [57], à nouveau sans observer de changement notable. Notons aussi que chaque élément du dispositif a été mesuré et pesé afin de s'assurer de la conformité de sa densité et de sa description géométrique dans le modèle numérique, comme mentionné précédemment pour l'eau de remplissage du puits.

La dernière hypothèse que nous avons envisagé à ce stade est une éventuelle humidification du sable de Fontainebleau de notre dispositif de mesure, bien que celui-ci soit resté à l'intérieur de la casemate DANAÏDES. Celle-ci n'est cependant pas régulée en température et lors des quelques mois passés avant les premières mesures en eau, il est possible que le sable se soit légèrement imprégné d'eau, malgré un état en surface laissant présager qu'il est resté sec. Des simulations complémentaires et une vérification de l'état du sable en fond de dispositif sont prévues quant à cette dernière hypothèse. L'annexe H récapitule les résultats des calculs et simulations avec et sans eau dans le puits. Malgré l'effet inattendu observé sur le signal PFN simulé avec de l'eau dans le puits de notre dispositif, nous rappelons que la plaquette d'uranium représente une anomalie ponctuelle et non une contamination homogène telle que simulée et présentée dans le chapitre 2. Comme le montre le tableau A.1 de cette annexe H, le modèle numérique prédit de bons ordres de grandeur du signal utile et du bruit de fond actif, permettant d'estimer des limites de détection réalistes pour la teneur en uranium en puits de forage.

3.4.5 Estimation des limites de détection en puits de forage

Dans toute la partie 3.4, nous avons comparé les simulations et les mesures réalisées en fût d'étalonnage. Malgré l'écart qui vient d'être discuté sur le cas particulier du puits en eau et pour lequel des investigations restent à effectuer, nous avons pu valider dans une large mesure notre méthode de simulation en vue de prédire un bon ordre de grandeur du bruit de fond et du signal utile pour la mesure PFN. La partie 3.3 nous avait permis de caractériser notre électronique de mesure et de mettre en évidence les pertes liées au seuil de discrimination du bruit électronique et γ (facteur 0.58) et les pertes à fort taux de comptage. Nous avons donc assez d'éléments en notre possession pour estimer, par simulation, des limites de détection réalistes pour la mesure de teneur en uranium en puits de forage.

- Méthode de calcul

Le calcul de limites de détections présenté se base sur les résultats publiés dans la revue *Radioprotection* [80]. Le processus de mesure étant aléatoire, faire un grand nombre de comptages identiques donne une distribution qui suit une loi de Poisson, comme sur la figure 3.59.

Les résultats de comptages bruts du bruit de fond (en bleu) sont, pour cet exemple, distribués selon une gaussienne de moyenne 2000 coups. En orange, une autre série de mesures correspondants cette fois-ci à la plus petite quantité d'uranium mesurable, selon la définition de limite de détection que nous allons rappeler. Le seuil de décision est défini comme le nombre de coups au-delà duquel on annonce la présence d'uranium. En l'absence de ce dernier, la probabilité que le signal brut soit supérieur au seuil de décision n'est que de 2.5 % (risque de fausse alarme). La limite de détection est définie comme la masse d'uranium pour laquelle le risque d'avoir un comptage inférieur au seuil de décision est égal à 2.5 % (risque de non détection).

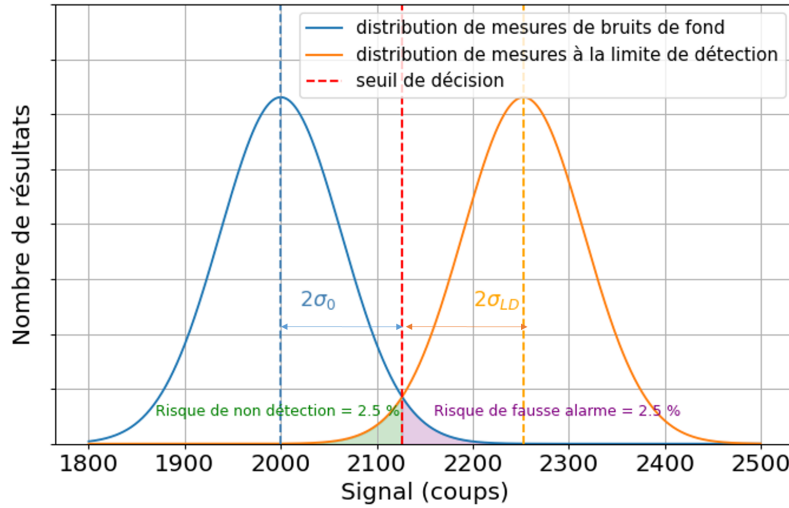


FIGURE 3.59 – Illustration des concepts de seuil de décision (SD) et de limite de détection (LD)

pour des distributions de résultats de mesure gaussiennes et suivant une loi de poisson [44].

Le signal net s'obtient en soustrayant au comptage brut, le nombre de coups correspondant au bruit de fond (moyenne de la distribution en bleu) :

$$S_{net} = S_{brut} - S_{bdf} \quad (3.10)$$

On peut alors calculer son incertitude associée $\sigma_{S_{net}}$ en tenant compte de la propagation quadratique des incertitudes $\sigma_{S_{brut}}$ et $\sigma_{S_{bdf}}$ liées à S_{brut} et S_{bdf} :

$$\sigma_{S_{net}} = \sqrt{\sigma_{S_{brut}}^2 + \sigma_{S_{bdf}}^2} \quad (3.11)$$

Or les comptages obéissent à une loi de Poisson, où :

$$\sigma_i = \sqrt{i} \quad (3.12)$$

Avec i le comptage considéré. Nous obtenons donc la relation :

$$\sigma_{S_{net}} = \sqrt{S_{brut} + S_{bdf}} = \sqrt{S_{net} + 2 \times S_{bdf}} \quad (3.13)$$

Dans le cas où la mesure est un bruit de fond, le comptage S_{net} vaut alors 0 et nous avons :

$$\sigma_0 = \sqrt{2 \times S_{bdf}} \quad (3.14)$$

Pour une distribution gaussienne des comptages du bruit de fond, le seuil de décision défini précédemment est donné pour une gaussienne par la relation (3.15) :

$$SD = 1.96 \times \sigma_0 = 1.96 \sqrt{2 \times S_{bdf}} \quad (3.15)$$

A la limite de détection, le signal net est petit par rapport au bruit de fond et on peut considérer que l'écart type de la distribution des comptages bruts est proche de celui des comptages bruts du bruit du fond. Dans l'exemple de la figure 3.59, la racine carrée des 2000 coups du BDF vaut environ 45 coups et celle du signal à la LD, 2250 coups, vaut environ 47 coups. On peut alors écrire $\sigma_0 \approx \sigma_{LD}$ et l'équation (3.15) peut être utilisée pour estimer, en première approximation, la limite de détection :

$$LD = SD + 1.96 \times \sigma_{LD} \approx 3.92\sqrt{2 \times S_{bdf}} \quad (3.16)$$

La limite de détection est ici un nombre de coups qui dépend du temps d'acquisition. L'objectif de cette partie est d'estimer la teneur minimum d'uranium dont le signal net mesuré est égal à la LD dans un temps donné.

Nous allons considérer deux cas de figure, d'une part une mesure dite « statique » de 180 secondes où la sonde interroge la même zone du puits. D'autre part nous allons évaluer la teneur minimum d'uranium mesurable en mode « balayage » (scan mod) à une vitesse élevée mais réaliste de 5 m.min^{-1} , soit environ 8 cm.s^{-1} . La distance entre la source de neutrons et le centre du compteur ^3He étant de l'ordre de 30 cm et la réponse spatiale à la plaquette d'uranium (profil comme celui de la figure 3.51) montrant une zone de sensibilité de cet ordre, nous pouvons considérer que nous interrogeons la même zone du puits pendant environ 4 secondes.

La valeur du bruit de fond conditionne la limite de détection et doit être estimée de façon la plus réaliste possible. Nous avons vu en partie 3.4 que la principale composante du bruit de fond actif est liée à l'activation de ^{17}O et que l'ajout d'eau dans le puits central de notre dispositif de mesure réduisait cette composante d'un facteur 2 environ, de façon contre-intuitive car l'eau agit comme un écran à l'activation du sable par les neutrons rapides du générateur, le sable étant plus riche que l'eau en noyaux d'oxygène (H_2O de densité 1 vs. SiO_2 densité apparente 1.61) et pour la détection des neutrons de désexcitation des noyaux d' ^{17}N par le bloc compteur entouré de cadmium. Nous devons donc réaliser le même calcul dans un puits de forage, pour les porosités hydrogène limites que nous avons étudiées au chapitre 2, à savoir 0 et 40 %. En cas de différence significative, il faudra donc calculer l'intervalle des limites de détection, associé aux deux bruits de fonds actifs calculés.

- **Calculs du bruit de fond actif liée à l'activation de ^{17}O en puits de forage**

Nous avons utilisé la géométrie de référence en puits de forage décrite dans le chapitre 2 pour calculer la contribution au bruit de fond actif du signal lié à l'activation de ^{17}O . Les éléments de volume ont été découpés ici aussi en couronnes de 50 cm de hauteur, de 10 cm d'épaisseur, puis 20 cm pour les couronnes les extérieures (voir figures 3.60 et 3.61).

Dans un premier temps, nous avons réalisé une simulation en segmentant les éléments de volume proches de la source de neutrons contenant de l'oxygène. Le sable du puits a été découpé en couronnes de 50 cm de hauteur et 10 cm d'épaisseur, puis 20 cm d'épaisseur pour les couronnes les extérieures, voir figure 3.45. Le milieu étant « infini » nous avons calculé un total de 58 taux de réactions différents dans le sable et les 2 éléments du générateur contenant de l'oxygène, à savoir l'enveloppe d'alumine (Al_2O_3) et le support de la cible d'hydruure de titane (BeO). A l'instar du calcul précédent, nous avons gardé les 26 éléments de volumes représentant 97 % des activations de ce premier calcul et nous les avons ensuite utilisés comme sources secondaires de neutrons émis par les noyaux activés et excités de $^{17}\text{N}^*$. Ces opérations ont été réalisées deux fois, pour une matrice de silice homogène avec une porosité hydrogène de 0 et 40 %. Les résultats sont présentés sur les figures 3.60 et 3.61.

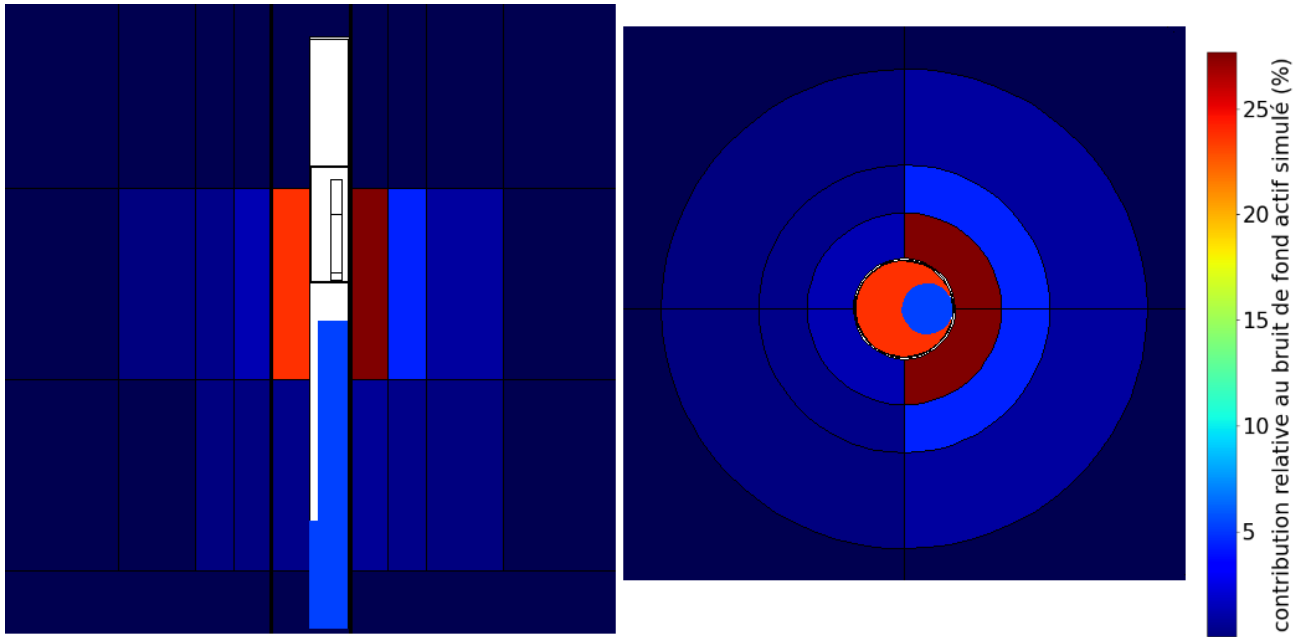


FIGURE 3.60 – Modèle numérique MCNP pour le calcul de taux de réaction d'activation de ^{17}O dans un puits de forage, avec une matrice homogène de silice de porosité hydrogène 0 %. Coupe transversale (à gauche) et coupe horizontale (à droite), les éléments de volume sont colorés en fonction de leur contribution relative au signal de bruit de fond actif simulé par cette méthode. Réalisé en partie avec MCNP ViSED [23].

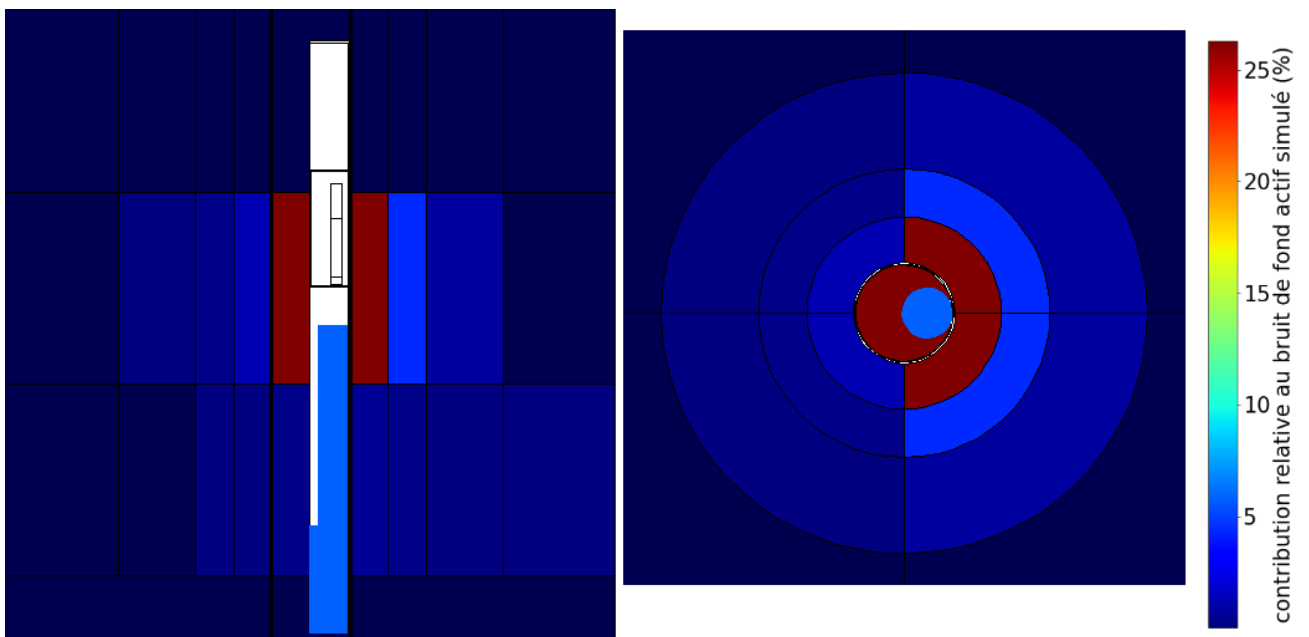


FIGURE 3.61 – Modèle numérique MCNP pour le calcul de taux de réaction d'activation de ^{17}O dans un puits de forage, avec une matrice homogène de silice de porosité hydrogène 40 %. Coupe transversale (à gauche) et coupe horizontale (à droite), les éléments de volume sont colorés en fonction de leur contribution relative au signal de bruit de fond actif simulé par cette méthode. Réalisé en partie avec MCNP ViSED [23].

Nous voyons que la répartition géométrique des contributions relatives est assez similaire dans les deux cas, malgré l'écart important de porosité hydrogène. Comme lors des calculs réalisés avec le fût d'étalonnage, c'est la couronne de sable en face de la cible qui est la principale source du signal produit par activation de l' ^{17}O , avec ici presque la moitié du signal qui provient de ces deux volumes de sable. L'eau du puits autour du générateur de neutrons vient en 3^{ème} position et ces trois éléments de volume représentent environ 70 % du signal d'activation pour les deux porosités étudiées.

TABLEAU 3.14 – Récapitulatif des estimations de contribution au bruit de fond actif, du signal correspondant à l'activation de l' ^{17}O .

	Simulation du fût étalon avec puits en air	Simulation du fût étalon avec puits en eau	Simulation du puits de forage $\Phi_H = 0 \%$	Simulation du puits de forage $\Phi_H = 40 \%$
Signal du bruit de fond actif simulé par neutron source $bdf_{^{17}\text{O}}$	2.7×10^{-8}	1.4×10^{-8}	2.3×10^{-8}	2.1×10^{-8}
Incertitude associée	0.2×10^{-8}	0.1×10^{-8}	0.2×10^{-8}	0.2×10^{-8}

Les contributions totales au bruit de fond actif estimées par cette méthode et pour ces cas de figures sont rapportées dans le tableau 3.14 et comparées aux précédentes valeurs estimées en fût d'étalonnage. Nous constatons une différence relative de seulement 10 % entre les bruits de fond actifs simulés en puits de forage avec les porosités hydrogène de 0 et 40 % et le puits rempli d'eau (alors que pour le fût étalon, l'effet d'un remplissage en air ou en eau du puits était plus important, de l'ordre d'un facteur 2 avec du sable sec) et nous pourrions retenir leur valeur moyenne pour les estimations de limite de détection en puits e forage.

- Estimation des limites de détection de la mesure PFN en puits de forage

Nous avons vu dans la partie 3.4.2, qu'un facteur 2.5 était observé entre l'estimation par simulation de cette contribution au bruit de fond actif et la mesure associée, dont nous tenons compte pour estimer le bruit de fond moyen S_{bdf} nécessaire aux calculs de limites de détection dans la formule (3.16) ci-dessous. Il faut aussi multiplier les valeurs du tableau 3.14 par le nombre total de neutrons émis par le générateur, égal au produit du temps de mesure par le taux d'émission neutronique moyen. Ensuite, il faut tenir compte de la fraction du temps occupée par de la fenêtre w_{PFN} par rapport à la durée d'un cycle complet. Il est également nécessaire d'appliquer le facteur $k_{seuilB} = 0.58$ dû aux pertes de comptage liées au seuil de l'électronique :

$$S_{bdf}(t) = bdf_{^{17}\text{O}} \times \langle S \rangle \times t \times \frac{5000 - 850}{5000} \times k_{seuilB} \times \frac{1}{2.5} \quad (3.17)$$

Avec $\langle S \rangle$ le taux d'émission neutronique moyen du générateur sur la durée de mesure, ici 10^8 s^{-1} .

Nous pouvons, à présent, utiliser les équations (3.16) et (3.17) pour calculer les limites de détection en mode balayage ($t = 4 \text{ s}$) et en mesure statique ($t = 180 \text{ s}$) pour une matrice de silice avec une porosité hydrogène de 0 ou 40 %.

TABLEAU 3.15 – Calcul des limites de détection pour des temps de mesure de 4 s et 180 s, dans une formation homogène de silice avec une porosité hydrogène de 0 ou 40 %

Temps de mesure (s)	Porosité hydriigène (%)	BDF_{actif} (coups)	LD (coups)
4	0	1.8	9.2
4	40	1.6	8.9
180	0	78.9	49.5
180	40	71.2	47.1

Quant au signal net PFN en puits de forage, nous utilisons la figure 2.11 du chapitre 2 où le coefficient d'étalonnage CE_{PFN} (en coups par seconde et par ppm_U) a été calculé pour différentes porosités hydrogène du milieu. Nous multiplions CE_{PFN} par $k_{seuilB} = 0.58$ pour tenir compte des pertes de comptage liées au seuil électronique puis nous le divisons, selon une approche conservatoire, par un facteur correctif 1.5 pour tenir compte d'éventuelles traces d'absorbants neutroniques comme le B, le Li et le Gd mesurés par ICP-MS dans notre sable étalon de Fontainebleau. Ce facteur 1.5 est l'écart que nous avons observé entre la mesure PFN de la plaquette d'uranium et sa simulation MCNP sans absorbant neutronique, voir figure 3.49. Les limites de détection du tableau 3.15 (en coups), fonctions du temps de mesure t (en s) et de la porosité hydrogène du milieu Φ_H (en %), sont converties en teneurs en uranium Cm_U^{LD} via la relation (3.18) :

$$Cm_U^{LD}(t, \Phi_H) = \frac{LD_{\Phi_H}(t)}{t \times CE_{PFN}(\Phi_H)} \times k_{seuilB} \times \frac{1}{1.5} \quad (3.18)$$

Avec t le temps de mesure exprimé en seconde, et Φ_H la porosité hydrogène du milieu en %.

Les valeurs de CE_{PFN} associées aux porosité de 0 et 40 % sont respectivement $6.21 \times 10^{-2} \text{s}^{-1} \text{ppm}_U^{-1}$ et $3.37 \times 10^{-3} \text{s}^{-1} \text{ppm}_U^{-1}$. Les teneurs en uranium minimales mesurables ainsi calculées sont reportées dans le tableau 3.16 suivant.

TABLEAU 3.16 – Calcul des teneurs en uranium minimum mesurables pour des temps de mesure de 4 et 180 s, dans une formation homogène de silice avec une porosité hydrogène de 0 ou 40 %.

Temps de mesure (s)	Porosité hydrogène (%)	Signal utile PFN (coups)	LD (ppm_U)
4	0	9.2	96
4	40	8.9	1709
180	0	49.5	11
180	40	47.1	201

Ces premières estimations des limites de détection en puits de forage rempli d'eau et pour des porosités hydrogène extrêmes sont comprises entre 10 et 200 ppm_U pour des mesures statiques de 180 s, résultat comparable à ceux de la littérature [81], les sondes antérieures affichant des limites de détection inférieurs à 200 ppm_U pour quelques minutes de mesure.

En scan mode, les limites de détection correspondent à des teneurs beaucoup plus élevées, entre 100 et 2000 ppm_U pour 4 s de mesure, ce qui rend une évaluation précise de la teneur difficile pour des porosités importantes. En revanche, une classification grossière par famille de teneurs reste envisageable, moyennant une légère augmentation du temps de mesure selon la porosité.

Les facteurs de variabilité de ces limites de détection, agissant principalement sur le coefficient CE_{PFN} , sont nombreux. Dans le chapitre 2, nous avons vu que le signal PFN était relativement sensible à la lithologie. Expérimentalement, nous avons également remarqué que la présence d'absorbants neutroniques comme le lithium et le bore, même de l'ordre de quelques ppm, peut induire une variation du signal PFN de presque 50 %.

3.5 Conclusion

Dans ce dernier chapitre nous avons étudié expérimentalement la faisabilité de la méthode de mesure conjointe de teneur en uranium et de porosité hydrogène développée dans le chapitre 2. Deux campagnes de mesures ont été menées à bien. La première nous a permis de caractériser et de comparer trois chaînes de mesures soumises à de fort taux d'impulsions incidentes pendant le tir d'un générateur de neutrons D-T. Les mesures réalisées devaient démontrer la possibilité d'enregistrer des chronogrammes neutroniques complets et de pouvoir intégrer, en limitant les pertes de comptage liées au temps mort et le cas échéant en évaluant les possibilités de correction, le signal correspondant à la mesure de porosité hydrogène entre 80 et 350 μs après l'arrêt du tir du générateur. Les résultats principaux de cette campagne de mesures ont permis de mettre en évidence les meilleures performances de la « chaîne B », composée d'un compteur ^3He 30NH15CS couplé à un amplificateur en mode collection de courant de type G-ADSF10, avec laquelle nous avons pu monter jusqu'à un taux de comptage instantané mesuré (*OCR*, *Output Count Rate*) de $4.8 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ avec un taux d'impulsions incidentes (*ICR*) de $1.34 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ et des pertes de comptage liées au temps mort limitées à 38 %. Nous avons aussi montré que le temps mort de cette électronique reste non paralysable jusqu'à ce taux d'impulsions entrantes. Cela signifie qu'il est alors possible de corriger les pertes liées au temps mort. Nous avons également constaté, de façon inattendue, que la réduction de la durée de tir du générateur permet de limiter le temps mort moyen de la chaîne de mesure.

L'objectif de la deuxième campagne de mesure était de valider expérimentalement en laboratoire le schéma de simulation MCNP utilisé au chapitre 2 pour développer ces méthodes de mesure, avec d'une part l'effet de l'eau sur le signal neutronique rétrodiffusé pour la mesure de porosité hydrogène, et d'autre part la mesure des neutrons prompts de fission (PFN) pour la teneur en uranium, le tout dans un environnement le plus représentatif possible d'un puits de forage. Nous avons pour cela conçu et fait construire un fût étalon de 100 cm de diamètre et 150 cm de hauteur, contenant 1.6 t de sable de Fontainebleau. Ce dispositif, entièrement étanche, nous a notamment permis de remplir d'eau sa zone centrale simulant le puits de forage, sans changer la porosité hydrogène du sable alentour. A l'avenir, il devrait également permettre de saturer le sable en eau, ou de remplacer celui-ci, indépendamment de l'eau ou de l'air présent dans le puits central.

Les mesures réalisées dans ce « Tonneau des DANAÏDES » nous ont permis de caractériser le bruit de fond actif, qui semblait totalement négligeable dans les simulations réalisées dans le chapitre 2. Nous avons pu mesurer un faible bruit de fond passif de l'ordre de 25 coups par heure, imputable principalement aux rayonnements cosmiques. Les acquisitions ont également montré la présence d'un bruit de fond actif significatif dont nous avons finalement pu identifier l'origine principale, à savoir l'activation de l'isotope ^{17}O de l'oxygène présent en grande quantité dans notre environnement de mesure (sable, eau). Le produit de la réaction $^{17}\text{O}(n,p)^{17}\text{N}$ se désintègre avec une période de 4.17 s et le noyau fils excité, $^{17}\text{O}^*$, revient à son niveau fondamental en émettant un neutron rapide (retardé) détectable dans la fenêtre temporelle des PFN malgré le cadmium entourant le bloc de mesure. Ce bruit de fond reste assez limité (il faut en moyenne émettre 2×10^8 neutrons pour produire un coup dans notre compteur à ^3He) mais comme contribution principale du bruit de fond actif, il détermine en définitive les limites de détection.

Nous avons trouvé un bon accord en comparant les chronogrammes neutroniques mesurés et simulés en l'absence d'eau dans le puits central et le sable, notamment pour les zones temporelles correspondant au tir du générateur (écart $< 2.5\%$) et au signal rétrodiffusé (jusqu'à $1000\ \mu\text{s}$ après le début du tir). Un écart significatif sur le signal lié à la présence d'uranium, de l'ordre de 50% nous a permis de mettre en évidence la présence de traces d'absorbants neutroniques (de l'ordre de quelques ppm) dans notre sable, comme le lithium, le bore et le gadolinium. Les simulations ont montré qu'une concentration de l'ordre de quelques ppm de ces derniers est suffisante pour atténuer significativement le signal PFN, d'un facteur 1.5 dans notre dispositif de laboratoire. En translatant la plaquette d'uranium verticalement dans ce fût étalon, nous avons pu mesurer la réponse spatiale à un échantillon d'uranium quasi ponctuel et ainsi déterminer la zone spatiale de plus grande sensibilité, située en face du détecteur (entre ce dernier et le générateur) et d'une étendue de l'ordre de $30\ \text{cm}$, largeur à mi-hauteur du profil de signal vertical comme le montre la figure 3.53.

L'ajout d'eau dans le puits central du fût étalon nous a permis d'observer la sensibilité de notre maquette de sonde de laboratoire à l'ajout d'une grande quantité d'hydrogène. Les simulations correspondantes ont montré des variations très similaires dans la zone de mesure de la porosité hydrogène. Une atténuation globale du signal de l'ordre de 30% par rapport à la même mesure sans eau dans le dispositif a été trouvée aussi bien dans les mesures que par simulation, ce qui permet de valider le schéma de calcul de la mesure de porosité hydrogène. Celle-ci est réalisable en utilisant la fenêtre w_H proposée au chapitre 2 à condition de limiter les pertes de comptage liées au temps mort, ou de les corriger comme évoqué plus haut. Une différence notable des constantes de décroissance du signal PFN, liée à l'absorption des neutrons thermiques dans l'eau du puits, a été mise en lumière comme attendu d'après les simulations du chapitre 2.

Finalement, en nous servant d'une grande partie de nos résultats de mesure et des coefficients d'étalonnage CE_{PFN} (en coups par seconde et par ppm d'uranium dans la formation) calculés dans le chapitre 2, nous avons pu calculer une première estimation des limites de détection pour la mesure de teneur en uranium en puits de forage. Nous avons estimé que le bruit de fond actif dans cet environnement complexe devrait rester relativement constant sur la gamme étudiée de porosités hydrogène, de 0 à 40% , et du même ordre de grandeur que ce que nous avons mesuré en laboratoire. Les limites de détection estimées sont ainsi comprises entre 10 et $200\ \text{ppm}_U$ pour des acquisitions de 3 minutes et des porosités hydrogènes variant de 0 à 40% , le coefficient d'étalonnage CE_{PFN} étant lui très sensible à la porosité hydrogène comme montré au chapitre 2.

Conclusion générale

L'objectif de cette thèse était de développer une nouvelle sonde diagraphique reposant sur l'interrogation neutronique active pour quantifier la teneur en uranium ainsi que la porosité hydrogène dans les mines d'uranium de type *ISR (In Situ Recovery)* d'ORANO Mining. Le premier objectif était de quantifier l'uranium dans les cas où sa teneur est faible ($< 200 \text{ ppm}_U$) mais aussi lorsqu'un fort déséquilibre entre le haut et le bas de sa chaîne de filiation radioactive fausse les mesures des sondes de comptage γ . Le second objectif est de fournir aux géologues et aux exploitants de ces mines un profil de la porosité hydrogène qui leur permet d'en déduire l'évolution de la perméabilité pour mieux modéliser les structures géologiques et optimiser l'exploitation par injection et collection de solutions chimiques dans le milieu poreux.

Dans le 1^{er} chapitre, nous avons vu que les méthodes historiques de mesure de porosité hydrogène reposent sur l'utilisation de sources neutroniques radioactives comme l'AmBe et d'au moins deux détecteurs sensibles aux neutrons thermiques, comme les compteurs à ^3He . Les sondes de dernière génération, principalement utilisées dans le domaine pétrolier, emploient des générateurs électriques de neutrons pulsés. Ces derniers possèdent des émissions neutroniques moyennes importantes, de l'ordre de 10^8 neutrons par seconde, mais beaucoup moins de contraintes radiologiques pour le stockage et la protection des opérateurs l'émission étant stoppée en dehors des mesures. De plus, la possibilité d'imposer des séquences temporelles variées (durée et fréquence des bouffées d'émission, trains d'impulsions en alternance avec des plages sans émission) permet d'adjoindre d'autres types de mesures, comme la quantité d'absorbants neutroniques (sonde Σ), moyennant l'ajout d'autres détecteurs (scintillateurs γ).

La mesure de teneur en uranium par détection de neutrons prompts de fission présente l'avantage d'être sensible directement à la quantité de noyaux fissiles, ici l'uranium 235, et donc d'être indépendante des déséquilibres potentiels des chaînes de décroissance de l'uranium. Largement utilisée pour caractériser les colis de déchets issus du retraitement des combustibles nucléaires, cette méthode est sensible à de très faibles teneurs en uranium en puits de forage, de l'ordre de quelques ppm_U , pour quelques minutes de mesure et dans des environnements avec peu d'hydrogène dans la formation géologique. La mesure en puits étant effectuée sous le niveau des nappes phréatiques, et avec des roches complètement saturées en eau, il est impératif d'interpréter les comptages PFN (*Prompt Fission Neutrons*) obtenus en tenant compte de la porosité hydrogène mesurée. Aujourd'hui, seules quelques sondes de dernière génération proposent d'adjoindre les deux mesures, permettant ainsi la mutualisation des usages du générateur de neutrons pulsé.

Dans le deuxième chapitre de cette thèse, nous avons proposé et étudié par simulation numérique Monte Carlo, avec le code MCNP, une méthode de mesure conjointe de teneur en uranium et de porosité hydrogène n'employant qu'un unique compteur à ^3He . Ce dernier, entouré de polyéthylène (comme thermalisant) puis de cadmium (comme absorbant neutronique) est sensible uniquement aux neutrons dont l'énergie est au-dessus de l'énergie de coupure du cadmium (0.5 eV). Les simulations que nous avons réalisées avec MCNP ont montré qu'il était possible de mesurer la porosité hydrogène en intégrant une partie du signal neutronique rétrodiffusé, de 30 à 300 μs après la fin de chaque impulsion neutronique du générateur (d'une durée de 50 μs). Le comptage effectué sur cette première fenêtre w_H est alors inversement proportionnel à la teneur en hydrogène présente autour de la sonde modélisée. La proximité entre le compteur et le générateur, ainsi que l'émission neutronique moyenne de ce dernier, 10^8 s^{-1} , permettent d'envisager des taux de comptage importants (entre 2×10^4 et $5 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$) sur cette fenêtre et donc une bonne précision statistique en des temps de mesure très courts, de l'ordre de quelques secondes.

Lorsque le signal rétrodiffusé s'est estompé, soit environ 850 μs après le début du tir, les seuls neutrons ayant assez d'énergie pour passer le blindage en cadmium du bloc de détection sont ceux des fissions induites sur l'uranium dans le milieu géologique (plus ceux du bruit de fond évoqué plus loin). Il est alors possible, dans une deuxième fenêtre d'intégration w_{PFN} qui s'étend jusqu'au début de la bouffée de neutrons qui suit (soit 5 ms après la première, pour une fréquence de 200 Hz), d'avoir un comptage proportionnel à la teneur en uranium. Nous avons pu vérifier par simulation que le coefficient d'étalonnage de cette dernière mesure dépend fortement de la porosité hydrogène et qu'il est possible de déterminer le bon coefficient en utilisant le résultat de mesure de la première fenêtre d'intégration

Nous avons aussi présenté au cours du deuxième chapitre une étude paramétrique dont l'objectif était d'identifier les principaux paramètres d'influence sur les mesures de porosité hydrogène et de teneur en uranium. Les simulations numériques nous ont permis d'explorer un grand nombre de paramètres comme le diamètre de tubage, le matériau et l'épaisseur de ce dernier, la lame d'eau qui le sépare de la sonde lorsqu'elle n'est pas plaquée contre le bord du puits, l'épaisseur de la gangue de boue qui se forme lors du forage, l'ajout d'une lame d'eau entre le tubage et la formation, et enfin la composition de cette dernière (lithologie). Nous nous sommes rendu compte que les effets de puits, dont les caractéristiques sont en principe maîtrisées, étaient prépondérants sur ceux de la formation. Il sera donc possible, moyennant une étude paramétrique dédiée à la sonde industrielle telle qu'elle sera conçue et construite, de compenser une grande partie des effets perturbant les deux mesures.

Ce deuxième chapitre nous a également permis d'identifier des limites d'applicabilité de notre méthode de mesure combinée. Nous pouvons citer la composition lithologique de la formation rocheuse, qui affecte de façon importante la mesure de teneur en uranium. Les absorbants neutroniques naturellement présents dans le milieu, tels que le chlore, le bore, le lithium et le gadolinium, peuvent atténuer considérablement le signal utile (PFN) de la mesure de teneur en uranium, sans perturber la mesure de porosité hydrogène. Des corrections sont envisageables avec par exemple une mesure complémentaire d'activation neutronique, utilisant un scintillateur γ , pour améliorer la connaissance de la composition élémentaire de l'environnement.

La validation expérimentale de ces méthodes de mesure étudiées par simulation Monte Carlo fait l'objet du 3^{ème} et dernier chapitre. Nous avons, lors d'une première campagne expérimentale, étudié la possibilité de mesurer le signal du compteur à ^3He pendant le tir d'un générateur pulsé de neutrons de 14 MeV, de type D-T, avec des émissions instantanées proches de 10^{10} s^{-1} et des taux d'impulsions dans le compteur (ou *ICR*, *Incoming Count Rate*) de l'ordre de 10^6 à 10^7 s^{-1} . Trois chaînes de mesures ont ainsi été testées avec différents types de compteurs et des électroniques à collection de charge ou de courant disponibles au laboratoire. Nous avons remarqué que la durée d'émission neutronique jouait un rôle important sur le taux de comptage transmis par l'électronique (*OCR*, *Output Count Rate*), à taux d'impulsions instantané (*ICR*) équivalent. Ainsi, raccourcir les bouffées de neutrons de 800 μs à 40 μs nous a permis d'augmenter significativement notre taux de comptage transmis. Au final, la chaîne constituée d'un compteur 30NH15CS couplé à un amplificateur à collection de courant de type G-ADSF10, a montré les meilleures performances en conservant un temps mort non paralysable jusqu'à un taux de comptage instantané mesuré de $4.8 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ (*OCR*), pour un taux d'impulsions incidentes de $1.34 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ (*ICR*) et donc des pertes de comptage liées au temps mort limitées à 38 %.

La deuxième campagne de mesure présentée dans ce dernier chapitre a permis de tester en laboratoire une maquette de sonde proche de l'outil diagraphique simulé dans le chapitre 2. Un fût d'étalonnage dédié, le « Tonneau des DANAÏDES », a également été fabriqué pour simuler au mieux un puits de forage et permettre de futurs essais impliquant d'ajouter de l'eau indépendamment dans le puits et la formation rocheuse étudiée, simulée par du sable de Fontainebleau. Les premiers essais ont montré un bon accord entre les mesures et les simulations numériques Monte Carlo du signal correspondant aux neutrons rétrodiffusés, du début du tir à 800 μs après celui-ci, avec moins de 3 % d'écart entre les calculs et l'expérience.

Nous avons également mis en évidence la présence d'un bruit de fond dans la zone d'intérêt du signal correspondant aux neutrons prompts de fission, de 1000 à 2000 μs après le début du tir. Ce bruit de fond, absent des simulations numériques avec les particules promptes induites par le générateur de neutrons, a finalement pu être identifié comme étant en majeure partie un signal retardé dû à l'activation de l'oxygène 17 par les neutrons rapides de ce dernier. La réaction $^{17}\text{O}(n,p)^{17}\text{N}$ est suivie de la désintégration β^- (avec une période de 4.17 s) du produit d'activation ^{17}N en $^{17}\text{O}^*$, noyau excité qui émet un neutron en revenant à son état fondamental. Ce bruit de fond actif retardé apparaît comme une composante constante majoritaire dans la fenêtre PFN, où le signal des particules promptes, comme les PFN en présence d'uranium, décroît rapidement d'un tir du générateur à l'autre (toutes les 2 ms lors des expériences réalisées à 500 Hz).

Une plaquette d'uranium a été utilisée dans notre dispositif pour comparer la réponse spatiale expérimentale d'un échantillon d'uranium quasi ponctuel avec les résultats de simulation correspondants. Une surestimation de l'ordre de 50 % des comptages expérimentaux par la simulation a été constaté, mettant en évidence la présence d'absorbants neutroniques non modélisés dans le sable. Après intégration de traces de bore, de lithium et de gadolinium mesurés par ICP-MS (quelques ppm), cet écart se réduit à environ 20 %. Le profil vertical correspondant à la translation de la plaquette d'uranium est, lui aussi, en bon accord avec la simulation et montre que la zone de sensibilité maximale de l'outil se situe en face du détecteur et non du générateur (ou entre les deux), avec une portée de l'ordre de 30 cm (largeur à mi-hauteur du profil).

L'ajout d'eau dans le puits central de notre dispositif étalon a permis de mesurer expérimentalement la sensibilité de notre sonde maquette à l'hydrogène présent dans son voisinage direct. Les simulations numériques montrent un comportement similaire au signal mesuré dans la fenêtre w_H dédiée à la porosité hydrogène, avec des pentes de décroissance du signal très proches et une atténuation du signal de l'ordre de 30 % quand on ajoute de l'eau dans le puits. Sur la zone w_{PFN} correspondant aux neutrons prompts de fission, l'ajout de cette eau a conduit comme attendu à une diminution du signal mesuré (de l'ordre de 20 %) mais, de façon surprenante, la simulation MCNP prédit ici une augmentation du signal simulé. Dans le 2^{ème} chapitre, l'ajout d'eau dans le sable (porosité hydrogène) conduisait alors à une diminution du signal PFN. De nombreuses investigations ont été effectuées par simulation (modification de la quantité d'eau modélisée, des options de calcul MCNP comme les bibliothèques prenant en compte les effets moléculaires dans le transport des neutrons thermiques, des techniques de réduction de variance de MCNP, etc.) sans trouver à ce stade d'effet significatif. D'autres essais nécessitant plus de temps sont en projet comme l'utilisation d'un autre code de calcul Monte Carlo [82].

Finalement, l'ensemble des résultats de simulation et expérimentaux nous a permis de réaliser une première estimation des limites de détection pour la mesure de teneur en uranium en puits de forage. Nous avons montré par simulation que le bruit de fond d'activation de l' ^{17}O attendu *in situ* ne fluctue pas significativement avec la porosité hydrogène de la formation, contrairement au coefficient d'étalonnage de la mesure de teneur en uranium. Pour des mesures dites en « balayage », soit 4 s par point mesuré, les limites de détection seraient comprises entre 100 et 1700 ppm_U, pour des porosités hydrogène évoluant entre 0 et 40 %. Les acquisitions « statiques », d'une durée de 180 s, permettraient d'atteindre des limites de détection entre 10 et 200 ppm_U pour ces mêmes porosités respectives.

Perspectives

Les travaux réalisés dans le cadre de cette thèse ont permis d'appliquer les compétences d'interrogation neutronique active à la mesure de minerai en puits de forage. C'est une première étape, dans le cadre de cette collaboration avec ORANO Mining, qui nécessite d'être poursuivie pour aboutir à un produit industrialisable.

Dans l'immédiat, les écarts qui persistent entre les simulations numériques et les mesures expérimentales, concernant principalement l'effet de l'eau sur le signal PFN, doivent être compris et maîtrisés. Un bon niveau de confiance dans les prédictions de la simulation est nécessaire pour pouvoir optimiser les performances de la sonde industrielle finale. Pour ce faire, nous allons tester les hypothèses restantes permettant d'expliquer les écarts observés, d'une part en simulant la présence d'humidité dans le sable à différentes concentrations, d'autre part en utilisant d'autres bibliothèques de données nucléaires et éventuellement en faisant appel à un autre code Monte Carlo de transport de particules nouvellement utilisé au LMN [82]. Une attention particulière aux techniques de réduction de variance sera également nécessaire pour atteindre la meilleure statistique possible dans ces calculs Monte Carlo, car actuellement les fluctuations statistiques restent importantes dans la fenêtre w_{PFN} .

Du point de vue expérimental, il sera en tout premier lieu nécessaire de saturer le sable de notre dispositif avec de l'eau pour étudier de façon réaliste l'effet de l'eau dans les pores de la formation sur le signal des fenêtres w_H pour la mesure de porosité et w_{PFN} pour celle de la teneur en uranium. Nous pourrions aussi utiliser plus largement les possibilités qu'offre le « Tonneau des DANAÏDES » en termes de réponses radiale et angulaire, grâce aux quatre tubes implantés dans la zone remplie de sable. Le remplacement du sable de Fontainebleau actuellement utilisé par d'autres sables de granulométries différentes serait aussi intéressant pour valider complètement l'approche expérimentalement. L'utilisation d'une matrice de sable uranifère, pour simuler une source homogène d'uranium, pourrait permettre de conforter tous les résultats de simulation en puits de forage. Finalement, au regard de l'important effet des absorbants neutroniques sur la mesure de la teneur en uranium, il serait judicieux de simuler et de mesurer l'effet d'une pépite de gadolinium, associée à la plaquette d'uranium étudiée dans ces travaux.

Des développements technologiques importants peuvent également être réalisés. L'amplificateur en mode courant G-ADSF10 n'étant plus fabriqué aujourd'hui, ni même son successeur 7820 (version plus récente et programmable à distance), il serait nécessaire de trouver ou de concevoir un équivalent. Une amélioration significative serait de numériser le signal directement issu du compteur, après découplage de la haute tension, avec un convertisseur analogique numérique rapide de façon à utiliser des filtres disponibles en traitement numérique du signal, en vue de limiter les pertes à fort taux de comptage. La correction de la dérive de la ligne de base du signal au cours du tir du générateur permettrait également d'utiliser un seuil de discrimination placé suffisamment haut en énergie pour ne compter que les impulsions des neutrons rapides du générateur interagissant directement dans le compteur, qui seraient un bon indicateur de l'émission neutronique instantanée potentiellement utilisable à des fins de monitoring.

Dans le cadre du développement d'un outil industriel pour la mesure en puits de forage, la future sonde disposera d'un générateur de neutrons de petites dimensions. Le tube neutronique « sodilog+ » en cours de développement chez SODERN permettra de réaliser des sondes de diamètre inférieur à 8 cm (3") et de réaliser des durées d'impulsions plus courtes, ce qui permettra d'améliorer le design de la sonde (notamment l'épaisseur de thermalisant) et de diminuer les limites de détection en optimisant les fenêtres d'intégration w_H et w_{PFN} .

Le passage de la mesure par fenêtres d'intégration, est analogue aux mesures de spectrométrie γ par bandes d'énergie [83], à l'analyse de chronogrammes neutroniques entiers comme dans le domaine de l'apprentissage statistique [84] pourrait également apporter des informations complémentaires. La forme de montée du signal au début du tir du générateur, ainsi que les différentes pentes du signal rétrodiffusé, sont autant d'indicateurs de sections efficaces macroscopiques de thermalisation des différentes familles énergétique des neutrons interrogateurs. Des techniques d'apprentissage automatique devraient être en mesure d'utiliser l'intégralité des chronogrammes neutroniques pour prédire la teneur en uranium ou la porosité hydrogène, en utilisant aussi potentiellement d'autres variables explicatives (données d'entrée) comme les paramètres connus du puits et de la formation.

Les corrélations entre les spectres mesurés ou simulés au cours d'une diagraphie, en translation verticale, forment un aspect qui n'a pas été abordé dans le cadre de cette thèse. Les études qui ont été réalisées portaient sur des environnements homogènes, mais la réalité est tout autre. Un développement important pourrait être la programmation d'un simulateur de diagraphies neutroniques, interpolant des résultats de simulation MCNP, pour différentes propriétés de la formation et de pouvoir ainsi générer le profil diagraphique aux interfaces géologiques. L'information contenue dans le chronogramme neutronique simulé ou mesuré à une profondeur donnée est pondérée par une sensibilité spatiale, deux points successifs en profondeur présentant une information redondante sur leur volume d'interrogation commun. Un simulateur de diagraphies réalistes ouvrirait à un panel d'études très vaste comme celles de sensibilité à différents phénomènes (hétérogénéités spatiales, pendage, absorbants neutroniques, etc.) ou l'analyse par des méthodes mathématiques avancées (approches bayésiennes, apprentissage automatique, géostatistique, etc...).

Finalement, une des perspectives les plus importantes offertes par la méthode de mesure conjointe de la porosité hydrogène et de la mesure en uranium présentée dans ce manuscrit est liée à la géométrie de mesure, fortement contrainte par un manque de place. L'utilisation d'un unique détecteur, de petite dimension, pour effectuer ces deux mesures permet l'ajout d'un scintillateur de type LaBr_3 derrière le bloc de détection neutronique. Un tel détecteur de spectrométrie γ apporterait des informations complémentaires sur la lithologie et notamment les absorbants neutroniques, par l'analyse des rayonnements γ prompts d'activation neutronique issus des réactions de diffusion inélastique ou de capture radiative, respectivement pendant et entre les impulsions du générateur. Il serait de plus envisageable de monitorer l'émission du générateur en plaçant un élément caractéristique entre les deux détecteurs, et de compter les particules γ prompts issus des diffusions inélastiques. Certains effets de puits et de formation pourraient ainsi être compensés en combinant toutes les informations disponibles dans les chronogrammes neutroniques et les différents spectres γ d'activation.

Les utilisateurs de sondes minières spectrales, dotées d'un générateur de neutrons et d'un LaBr_3 présentent par ailleurs de plus en plus d'intérêt pour la mesure de porosité, difficile à réaliser avec ce type d'outil. Une intégration des méthodes de mesure et de la géométrie de mesure développés au cours de cette thèse au sein d'un outil existant, comme la sonde *FastGrade* de SODERN, pourrait être un aboutissement important.

Annexes

Annexe A : Électronique des compteurs à ^3He

Les compteurs ^3He permettent la détection des neutrons grâce à la réaction (1.5). Les deux particules produites lors de la réaction, le triton et proton, se partagent les 765 keV disponibles sous forme d'énergie cinétique. Dans le meilleur des cas, les deux noyaux déposent toute leur énergie dans le gaz du détecteur (pic de collection totale à 765 keV sur la figure A.1). Si l'une des deux particules atteint une paroi avant de déposer toute son énergie, l'autre noyau (émis à 180° pour conserver l'impulsion) a de grandes chances de tout déposer dans le volume de détection. Deux épaulements remarquables sont présents à 574 et 191 keV, ils correspondent respectivement aux cas où le triton et le proton atteignent la paroi du détecteur.

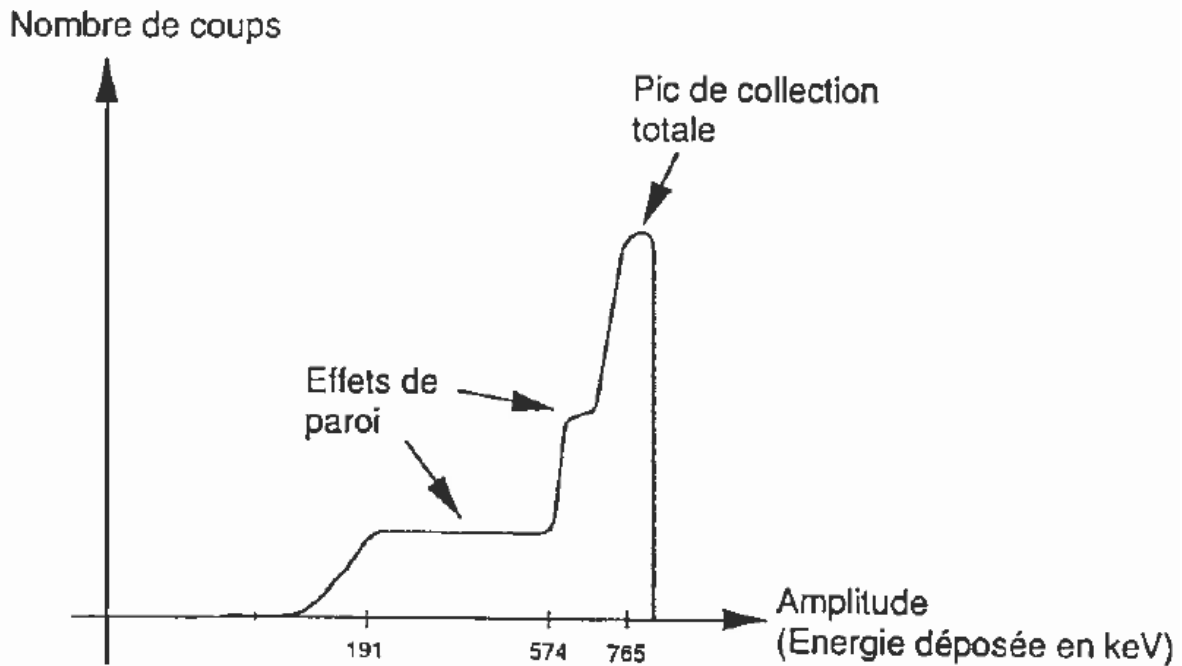


FIGURE A.1 – Spectre d'amplitude théorique des impulsions engendrées par un compteur proportionnel à ^3He [44].

Le signal électrique généré par l'ionisation du gaz est collecté par le fil anodique central des compteurs à ^3He , puis par une électronique à collection de courant ou de charge. La collection directe du courant généré dans le détecteur est une méthode permettant d'atteindre des taux de comptage très élevés sans rencontrer de problèmes d'empilements significatifs, typiquement ils sont de moins de 10 %. On peut calculer le taux d'empilement à l'aide de la formule suivante [39] :

$$\nu_{pileup} = 1 - \frac{1}{1 + n \times \tau} \quad (\text{A.1})$$

Avec ν_{pileup} taux d'empilement d'un système non paralyzable, n le taux de comptage en s^{-1} et τ la constante de temps du système, ici le temps de retour à la ligne de base d'une impulsion, soit environ 300 ns. Cela nous donne un taux de comptage limite de $3.7 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$ pour atteindre 10 % de taux d'empilement avec cette longueur moyenne d'impulsion. Cependant, cela se fait au prix d'une dégradation de la forme du spectre d'amplitude (voir figures A.2 et A.3). Ce dernier se trouve alors plus étalé, il est donc plus difficile de trouver un seuil discriminant efficacement bruit de fond électronique et signal utile.

Quel que soit le choix de ce dernier, des événements utiles liés à la détection de neutrons sont perdus car situés sous le seuil de discrimination du bruit de fond. La figure A.2 illustre bien ce problème : le seuil de discrimination illustré nuit à l'efficacité de détection. On peut noter toutefois que le bruit de fond dû aux rayonnements γ de la source parasite de ^{137}Cs reste très en deçà du seuil de coupure et cette insensibilité aux rayonnements γ est l'autre avantage majeur de la collection de courant.

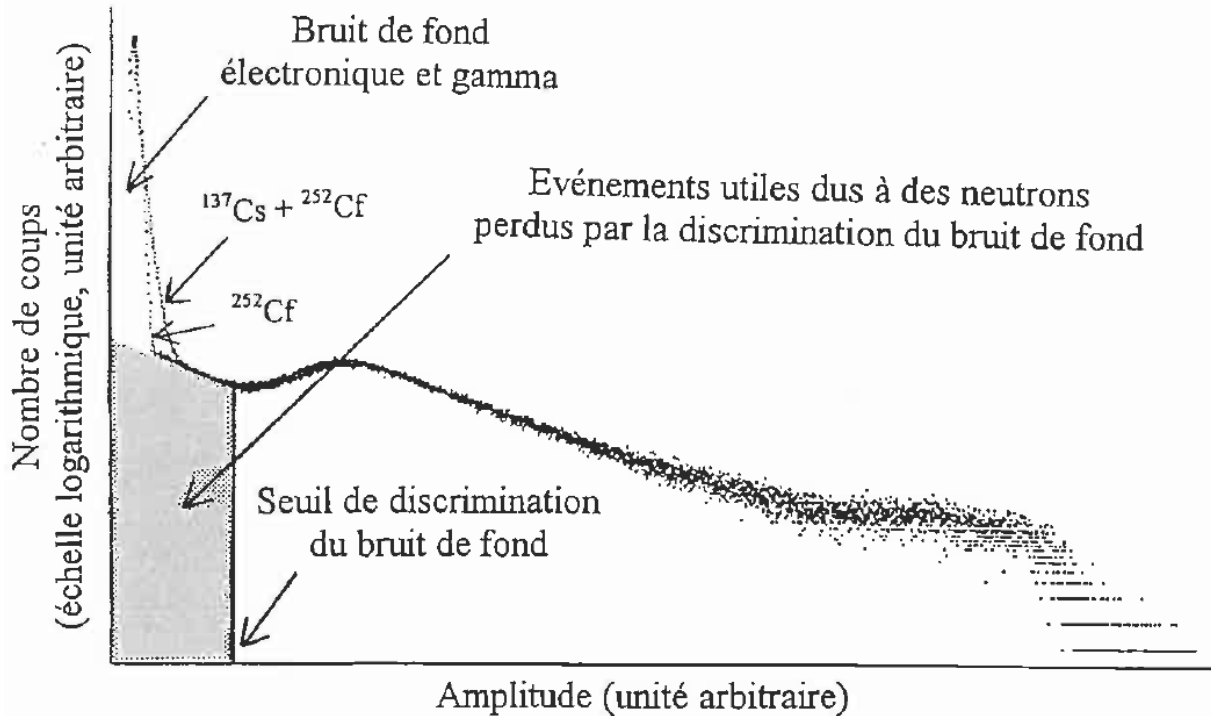


FIGURE A.2 – Spectre d'amplitude et sensibilité au rayonnement γ avec un amplificateur G.ADSF.10 à collection de courant [44]

En insérant un préamplificateur à collection de charges en sortie du détecteur, il est possible d'améliorer la forme du spectre d'amplitude et notamment la vallée de discrimination entre signal utile et bruit électronique, comme illustré en figure A.3, ce qui permet de gagner significativement en efficacité de détection. En revanche, en raison de la durée de collection des charges générée dans le détecteur, typiquement jusqu'à plusieurs microsecondes, ce mode d'acquisition est très sensible au phénomène d'empilement et donc au taux de comptage. La durée des impulsions peut s'allonger avec le temps alloué à la collection de charge, dans le spectre de la figure A.3 celui-ci est relativement court (de l'ordre de 0.5 à 1 μs) mais une collection complète permettant de tendre vers le spectre idéal de la figure A.1 peut prendre plus de μs . Pour que la durée des impulsions soit compatible avec le taux d'événements à mesurer, sans pour autant trop dénaturer le spectre « idéal », il faut donc trouver un compromis. Par exemple, avec l'amplificateur ACH utilisé pour le graphique, le taux d'empilement atteint 10 % dès $11\,000\text{ s}^{-1}$ en utilisant l'équation (A.1). De plus, la contribution parasite des rayonnements γ produits par la source parasite de ^{137}Cs peut faire disparaître la vallée de discrimination entre signal utile et bruit de fond. Les électroniques à collection de charge sont donc réservées aux applications à taux de comptage et à ambiance γ limités.

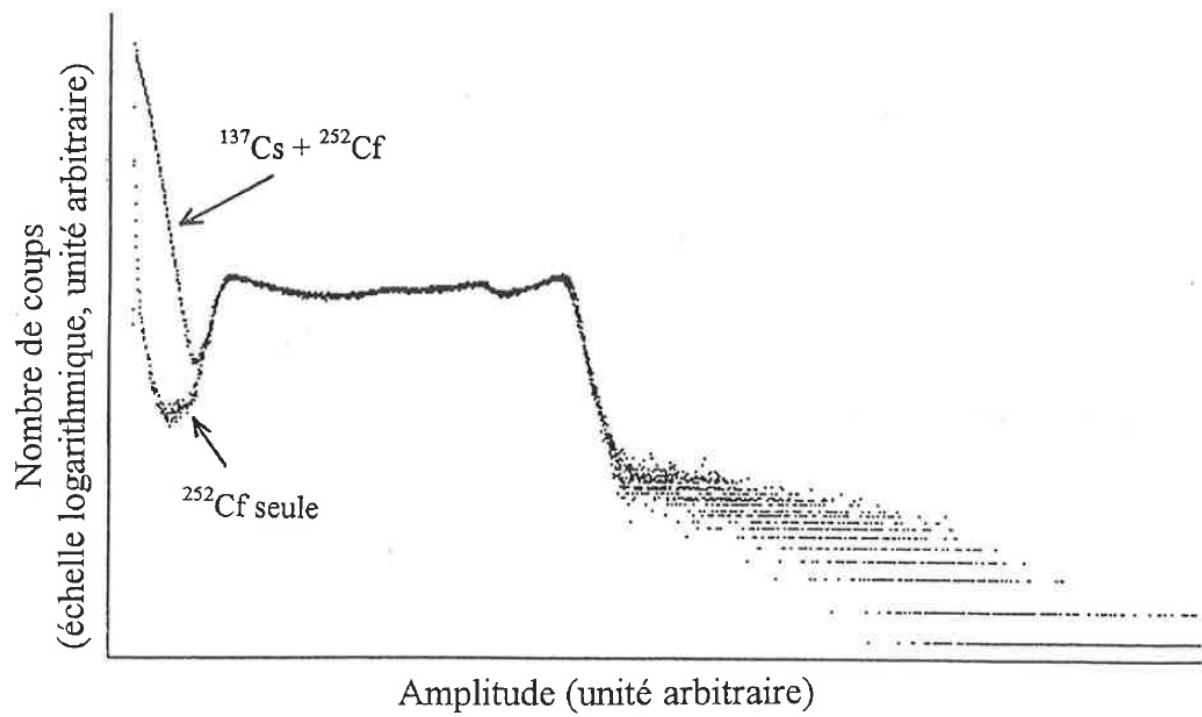


FIGURE A.3 – Spectre d'amplitude et sensibilité au rayonnement γ avec un amplificateur ACH en collection de charge [44]

Annexe B : Principe de la mesure DFN (*Delayed Fission Neutrons*)

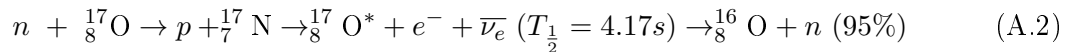
Il est possible de classer les neutrons émis lors d'une fission en deux catégories. Environ 99 % des neutrons sont émis dans les 10-14 s suivant la réaction, il s'agit des neutrons prompts de fission. Les fragments de fission peuvent à leur tour émettre un ou plusieurs neutrons en fonction de leur énergie résiduelle, de quelques millisecondes à quelques minutes après la fission en majorité, et même jusqu'à plusieurs heures [85]. Ces neutrons sont appelés neutrons retardés de fission. La figure A.4 montre les six groupes principaux de neutrons retardés émis à la suite d'une fission induite par neutron.

Half-life, sec	Energy, Mev	Yield, % of total neutrons emitted in fission,				
		Thermal and fast fission			Fast fission	
		U ²³⁵	U ²³³	Pu ²³⁹	U ²³⁸	Th ²³²
55	0.25	0.021	0.022	0.007	0.020	0.075
22	0.46	0.140	0.078	0.063	0.215	0.330
5.6	0.41	0.125	0.066	0.046	0.254	0.341
2.1	0.45	0.253	0.072	0.068	0.609	0.981
0.6	0.42	0.074	0.013	0.018	0.353	0.378
0.2		0.027	0.009	0.009	0.118	0.095
Total yield		0.64	0.26	0.21	1.57	2.20

FIGURE A.4 – Propriétés des principaux groupes d'émission de neutrons retardés de fission. [85]

Comme le montre la figure A.4, chaque groupe de neutrons retardés possède sa période de demi-vie et son énergie propre. Dans le cas de l'²³⁵U, les neutrons retardés ne représentent que 0.64 % des neutrons émis lors d'une fission. Le groupe d'intérêt présentant l'intensité la plus importante 0.253 % correspond à une demi-vie de 2.1 s.

Plusieurs brevets [86, 87, 88] décrivent l'utilisation de ces neutrons retardés de fission pour mesurer l'uranium présent dans des formations géologiques : à la suite d'une courte impulsion de neutrons rapides (de l'ordre de quelques μ s) il faut attendre que tout le signal attribué à la diffusion des neutrons incidents, mais aussi des neutrons prompts de fission, s'estompe. Les neutrons mesurés au cours des millisecondes suivantes peuvent être issus des neutrons retardés de fission, mais aussi de l'activation neutronique du milieu :



Les neutrons retardés de fission sont proportionnels au nombre de noyaux d'²³⁵U présent dans la formation. Une mesure de bruit de fond actif est nécessaire, dans un environnement représentatif du forage où il n'y a pas d'uranium afin de quantifier le signal issu de l'oxygène. Afin de monitorer l'émission neutronique, il est recommandé d'utiliser un détecteur secondaire pour éviter d'avoir du temps mort. Cette technique fut utilisée préférentiellement à la mesure PFN, pour sa plus grande facilité de mise en œuvre ; comptages plus faibles et vitesse d'électronique moins exigeante. Aujourd'hui, du fait des évolutions techniques et d'une bien meilleure précision statistique de la PFN, la mesure DFN n'est quasiment plus utilisée pour l'exploration minière de l'uranium.

Annexe C : Calcul de la teneur en uranium utile au signal

Par définition la porosité hydrogène Φ_H représente la fraction volumique (en %) occupée par de l'eau liquide :

$$\Phi_H = \frac{V_{H_2O}}{(V_{H_2O} + V_U + V_{solide})} \times 100 \quad (\text{A.3})$$

avec V_{H_2O} , V_U et V_{solide} les volumes respectifs occupés par l'eau, l'uranium et la matrice solide.

On considère un volume constant de 1 l ce qui nous donne :

$$\begin{aligned} V_{H_2O} + V_U + V_{solide} &= 1 \\ \Phi_H &= \frac{V_{H_2O}}{1} \times 100 \\ V_{H_2O} &= \frac{\Phi_H}{100} \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

Et la masse associée $m_{H_2O} = \frac{\Phi_H}{100}$ Nous pouvons ensuite écrire l'équation A.3 sous la forme :

$$\Phi_H = \frac{\frac{\Phi_H}{100}}{\frac{\Phi_H}{100} + \frac{m_U}{\rho_U} + \frac{m_{solide}}{\rho_{solide}}} \times 100 \quad (\text{A.5})$$

avec m_U et m_{solide} les masses respectives d'uranium et de matrice solide dans un volume de 1 litre de formation géologique, $\rho_U = 18.95 \text{ g.cm}^{-3}$ la masse volumique de l'uranium que l'on prendra comme constante, et ρ_{solide} masse volumique de la matrice sèche comme paramètre. $\rho_{solide} = 2.65 \text{ g.cm}^{-3}$ dans le cas d'une matrice de SiO_2 à 0 % de porosité totale.

Dans le cas d'une autre matrice comme la calcite CaCO_3 à 0 % de porosité totale $\rho_{solide} = \rho_{\text{CaCO}_3} = 2.71 \text{ g.cm}^{-3}$.

La teneur en uranium géologique $Cm_U^{geologie}$ est définie comme la fraction massique d'uranium présent dans la matrice sèche, soit :

$$Cm_U^{geologie} = \frac{m_u}{m_u + m_{solide}} \times 10^6 \text{ ppm}_U \quad (\text{A.6})$$

On peut alors exprimer m_{solide} dans les équations A.5 et A.6 en fonction de m_U :

$$\begin{cases} m_s = (1 - \frac{\Phi_H}{100} - \frac{m_u}{\rho_u}) \times \rho_{solide} \\ m_s = \frac{m_u \times (10^6 - Cm_U^{geologie})}{Cm_U^{geologie}} \end{cases} \quad (\text{A.7})$$

Ce qui nous permet d'isoler m_U en fonction de Φ_H , $Cm_U^{geologie}$ et ρ_{solide} :

$$m_u(\Phi_H, Cm_U^{geologie}, \rho_{solide}) = \frac{\rho_s \times (\frac{\Phi_H}{100} - 1)}{\frac{Cm_U^{geologie} - 10^6}{Cm_U^{geologie}} - \frac{\rho_s}{18.95}} \quad (\text{A.8})$$

Enfin, la concentration massique réelle en uranium Cm_U^{vraie} , c'est à dire la grandeur à implémenter dans les modélisations MCNP pour simuler correctement le signal PFN, pour les teneurs d'intérêt inférieures à 10 000 ppm_U et sans effet pépite, s'exprime comme suit :

$$Cm_U^{vraie} = \frac{m_U}{m_U + m_s + m_{H_2O}} \times 10^6 \text{ ppm}_U \quad (\text{A.9})$$

On résout à présent le système A.10 pour exprimer la concentration massique réelle en uranium dans le volume interrogé à partir de la teneur usuelle, de la porosité hydrogène et de la densité de la formation sèche :

$$\begin{cases} \frac{1}{Cm_U^{vraie}} = \frac{1}{Cm_U^{geologie}} + \frac{m_{H_2O}}{m_u(\Phi_H, Cm_U^{geologie}, \rho_{solide})} \times 10^6 \\ m_u(\Phi_H, Cm_U^{geologie}, \rho_s) = \frac{\rho_s \times (\frac{\Phi_H}{100} - 1)}{\frac{Cm_U^{geologie} - 10^6}{Cm_U^{geologie}} - \frac{\rho_{solide}}{18.95}} \end{cases} \quad (\text{A.10})$$

En exprimant $Cm_U^{geologie}$ en fraction massique et Φ_H en fraction volumique on obtient l'équation finale :

$$Cm_U^{vraie}(\Phi_H, Cm_U^{geologie}, \rho_{solide}) = \frac{Cm_U^{geologie} \times (\Phi_H - 1) \times \rho_{solide}}{(\Phi_H - 1) \times \rho_{solide} + \Phi_H \times Cm_U^{geologie} \times \left(\frac{Cm_U^{geologie} - 1}{Cm_U^{geologie}} - \frac{\rho_{solide}}{18.95} \right)} \times 10^6 \text{ ppm}_U$$

(A.11)

Cette fonction permet de remonter à la teneur réelle en uranium de la formation à implémenter dans les modélisations MCNP à partir de la teneur de la partie sèche utilisée par les géologues, ce qui est indispensable pour simuler correctement le signal PFN.

Annexe D : Détermination de la porosité hydrogène par décroissance du signal PFN

Cette annexe décrit plus en détail une des revendications de l'invention FR2110722 [4], à savoir la possibilité de déterminer la porosité hydrogène uniquement à l'aide du signal PFN. Cette technique est inspirée des mesures de décroissance du signal neutron (*neutron decay*) utilisées sur le signal rétrodiffusé après l'impulsion, la pente de décroissance du signal est alors directement corrélée aux différents thermalisants présents dans l'environnement. Cette méthode non basée sur un comptage direct a besoin d'une bonne statistique sur le signal neutron (quand on détecte les neutrons prompts de fission PFN) ou γ (quand on détecte les rayonnements de capture radiative) [55] pour donner un résultat exploitable.

Dans le cadre de la méthode décrite dans le dépôt de brevet FR2110722 [4] c'est la décroissance du signal PFN qui est mesurée afin d'estimer la constante de thermalisation/absorption des neutrons thermiques de l'environnement, dans laquelle intervient entre autres la teneur en hydrogène. La figure A.5 montre le signal PFN obtenu pour une forte teneur en uranium (10 000 ppm_U) et différentes porosités hydrogène. On peut voir que la pente de décroissance du signal est nettement liée à la valeur de la porosité hydrogène : plus cette dernière est élevée, plus le signal décroît rapidement. La constante de décroissance du signal PFN est directement liée à celle des neutrons thermiques induisant les fissions. Le prérequis à cette technique est de fait la présence de suffisamment d'uranium, ou un temps de mesure suffisamment important pour avoir une statistique sur le signal PFN exploitable. Il faut aussi que cet effet soit découplé des variations possibles de la lithologie, car il se peut que d'autres absorbants neutroniques soient présents en plus de l'hydrogène (bore, lithium chlore, gadolinium, hafnium, cadmium, ...) et l'uranium lui-même, selon la teneur, mais ce dernier effet peut-être pris en compte de façon itérative). Nous ne considérons ici que la lithologie du cas de référence (SiO₂).

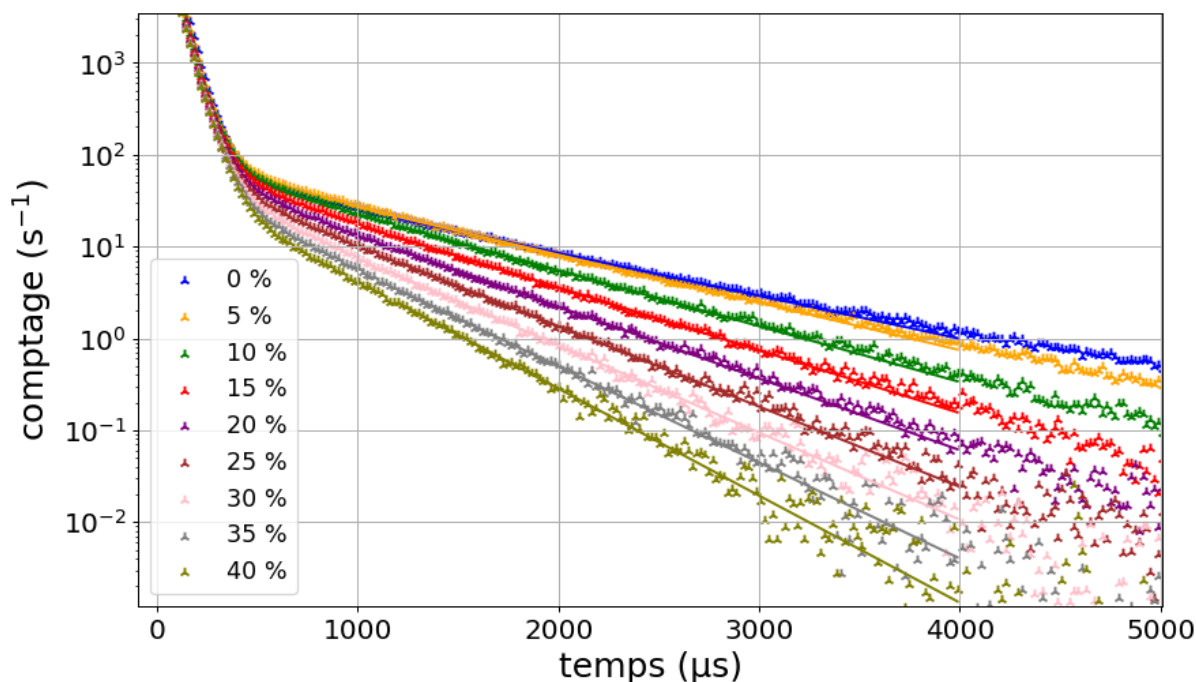


FIGURE A.5 – Influence de la porosité hydrogène sur la décroissance du signal PFN.

En partant du principe que le signal PFN suit une loi de décroissance exponentielle de la forme $N_0 \times e^{-\lambda t}$ avec N_0 l'intensité maximale du signal PFN (qui se situe dans la fenêtre du signal rétrodiffusé, mais qui est négligeable par rapport à celui-ci) et λ la pente de décroissance du signal, on obtient la figure A.6. Sur cette dernière, on voit l'évolution de λ en fonction de la porosité hydrogène simulée pour chaque signal PFN. La relation entre ces deux grandeurs est affine dans la gamme de porosités hydrogène simulée et la pente de décroissance double pour une augmentation de la porosité hydrogène de 25 %. Contrairement à la méthode de mesure de porosité hydrogène évoquée dans ce document, basée sur le comptage du signal rétrodiffusé sur w_H , la sensibilité de cette méthode est constante sur le domaine de porosité mais la statistique de comptage est cependant très dépendante de la teneur en uranium, l'absence de cet élément rend alors la méthode impraticable.

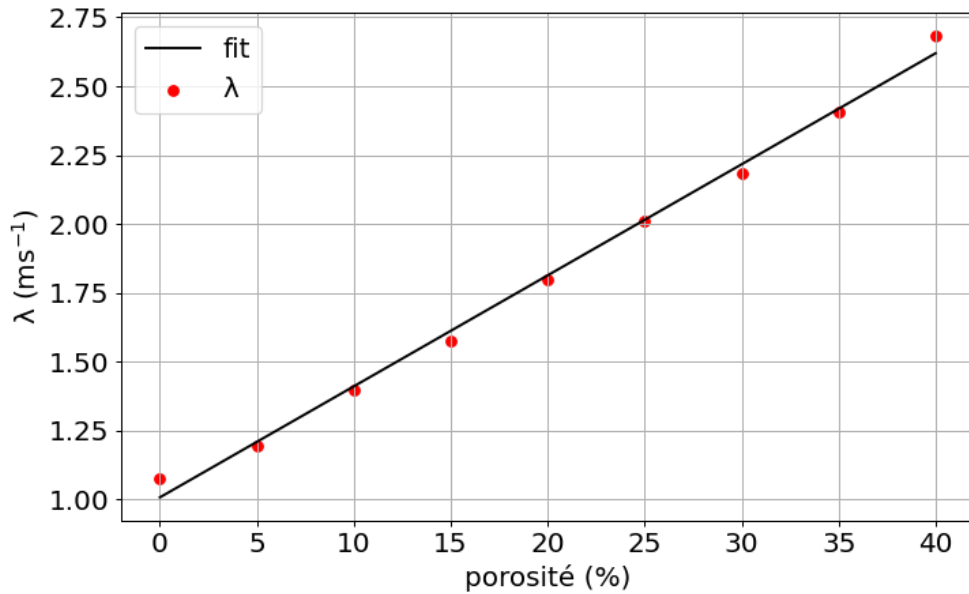


FIGURE A.6 – Influence de la porosité hydrogène sur la constante de décroissance du signal PFN.

Annexe E : Effet du remplissage des pores de la formation

Cette annexe traite du cas particulier de formations non saturées à 100 % en eau, où la porosité volumique (fraction de volume des pores) est différente de la porosité hydrogène (fraction de volume occupée par l'eau), contrairement au reste du document où les pores sont totalement emplis d'eau. Ici, la formation est une silice (SiO_2) modélisée avec une porosité volumique de 40 %, mais une partie du volume des pores seulement est remplie d'eau, simulant ainsi une saturation variable que l'on peut trouver à l'affleurement d'une nappe. Ainsi, nous avons complété le remplissage des pores en air, pour que la fraction du volume de la formation non occupé par la matrice solide fasse toujours 40 % (par exemple 40 % air + 0 % H_2O , 20 % air + 20 % H_2O , ou encore 0 % air + 40 % H_2O).

- Effet sur la mesure de porosité du remplissage des pores d'une matrice SiO_2

La figure A.7 montre l'évolution des comptages sur w_H en fonction de la fraction volumique des pores est occupée par de l'air. La porosité hydrogène est toujours représentée en abscisse (fraction du volume de formation occupé par de l'eau) et nous avons reporté en noir les valeurs dites « de référence » de la Figure 2.8, lorsque la porosité totale équivaut à la porosité hydrogène (saturation en eau à 100 %). Les deux simulations avec une porosité hydrogène de 40 % sont identiques car l'eau occupe tout le volume des pores de la formation étudiée ici (de 40 % de porosité volumique) mais les résultats diffèrent à 0 %. Dans cette dernière les pores sont alors occupés par de l'air, ce qui conduit à une formation de densité 1.6 au lieu de 2.65 pour la formation de référence où 0 % de porosité hydrogène qui correspond aussi à 0 % de porosité volumique. Le volume d'interrogation est plus grand avec la densité 1.65 car les neutrons se propagent plus loin dans la formation, mais une proportion un peu plus petite est rétrodiffusée vers le bloc de détection de la sonde.

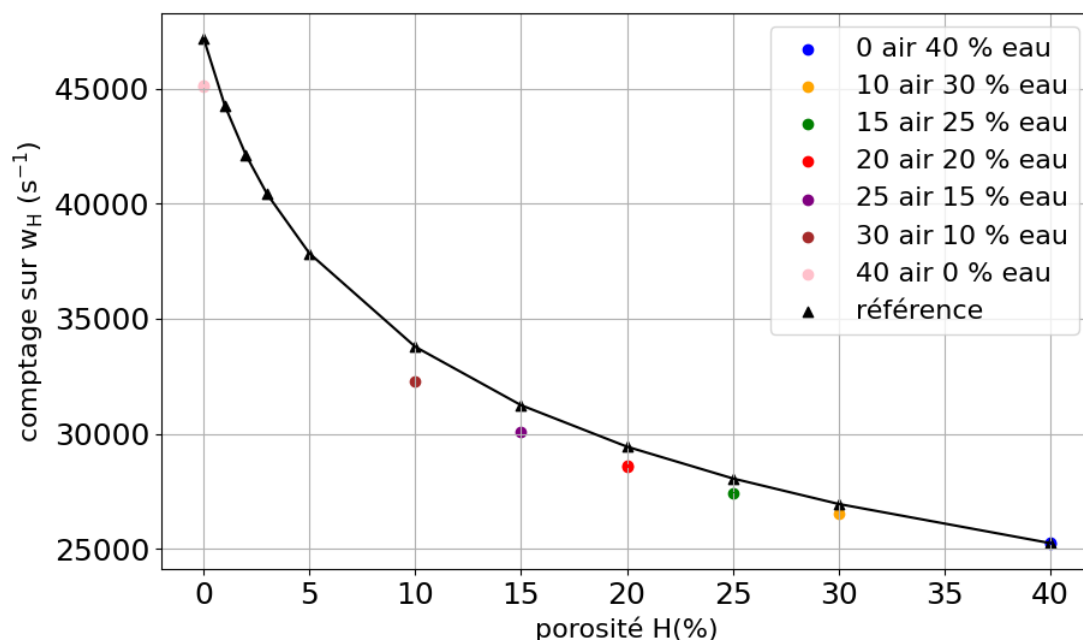


FIGURE A.7 – Effet sur le comptage dans la fenêtre w_H du remplissage par de l'air ou de l'eau des pores d'une formation de silice SiO_2 de porosité totale 40 % (fraction de volume occupée par les pores).

La faible atténuation du comptage observée par l'ajout d'air est de l'ordre de 3 %, ce qui se traduit par une erreur relative maximum de 16 % dans le cas d'une porosité hydrogène de 20 % (23.2 % lus au lieu de 20 %). Si la porosité volumique est de 40 %, dans le cas où les pores sont totalement remplis par de l'eau, alors le comptage est de 25 000 s⁻¹ et on lit une porosité hydrogène de 40 % avec la courbe de calibration de référence (triangles noirs). Par contre, si on remplace l'eau par de l'air dans les pores, alors le comptage sera de 45 000 s⁻¹ et on va annoncer une porosité hydrogène de 0.7 %. In fine la sonde neutronique mesure avec peu de biais la porosité hydrogène (utilisée par ailleurs pour corriger la mesure de teneur en uranium, qui sera donc également correctement estimée), mais absolument pas la porosité volumique réelle de la formation qui est ici de 40 %. Cette remarque peut s'avérer d'une grande importance pour le procédé ISR (*In Situ Recovery*) pour lequel la porosité volumique est un paramètre d'exploitation essentiel car on injecte et on collecte des fluides dans la formation. On ne peut donc évaluer la porosité volumique avec la mesure de porosité hydrogène que dans un environnement saturé en eau.

- Effet sur la mesure de teneur en uranium du remplissage des pores d'une matrice SiO₂

La figure A.8 montre l'évolution des comptages sur la fenêtre w_{PFN} pour différentes teneurs et différentes fractions du volume de remplissage des pores en air, toujours avec une porosité volumique de 40 % et dans le cas d'une matrice SiO₂. Comme précédemment, les points dits « de référence » (triangles) sont calculés pour la même géométrie mais avec une saturation des pores en eau de 100 %, donc avec des porosités hydrogène et volumique identiques. La réponse est toujours linéaire entre la quantité d'uranium simulée et le comptage obtenu. La pente (coefficient d'étalonnage CE_{PFN}) dépend peu de la fraction de remplissage en eau des pores (saturation). Pour une porosité hydrogène supérieure ou égale à 20 % il est difficile de séparer les courbes, les points étant tous inclus dans les barres d'incertitudes à 1 écart type. Par contre, quand la formation de porosité volumique 40 % étudiée dans cette annexe a des pores totalement remplis d'air, le coefficient CE_{PFN} n'est que de $5.5 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1} \cdot \text{ppm}_U^{-1}$ contre $6.3 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1} \cdot \text{ppm}_U^{-1}$ pour la formation de référence sans pore (de porosité hydrogène nulle), soit un écart relatif maximum de 12.4 %. Cette situation correspond à du sable fortement poreux ($d = 1.6$ contre 2.65) et très sec, que l'on peut rencontrer en surface et sur les premiers mètres d'un forage. Pour cette même formation de porosité volumique de 40 %, le cas saturé en eau implique un coefficient CE_{PFN} beaucoup plus faible, de l'ordre de $0.5 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1} \cdot \text{ppm}_U^{-1}$, que lorsque les pores sont remplis d'air. La mesure de porosité hydrogène donne cependant accès à la bonne valeur de CE_{PFN} au travers de la courbe de correction représentée en figure 2.11. Le risque d'erreur d'interprétation concerne donc uniquement la différence entre la porosité hydrogène mesurée et la porosité volumique, en cas de présence d'air dans les pores.

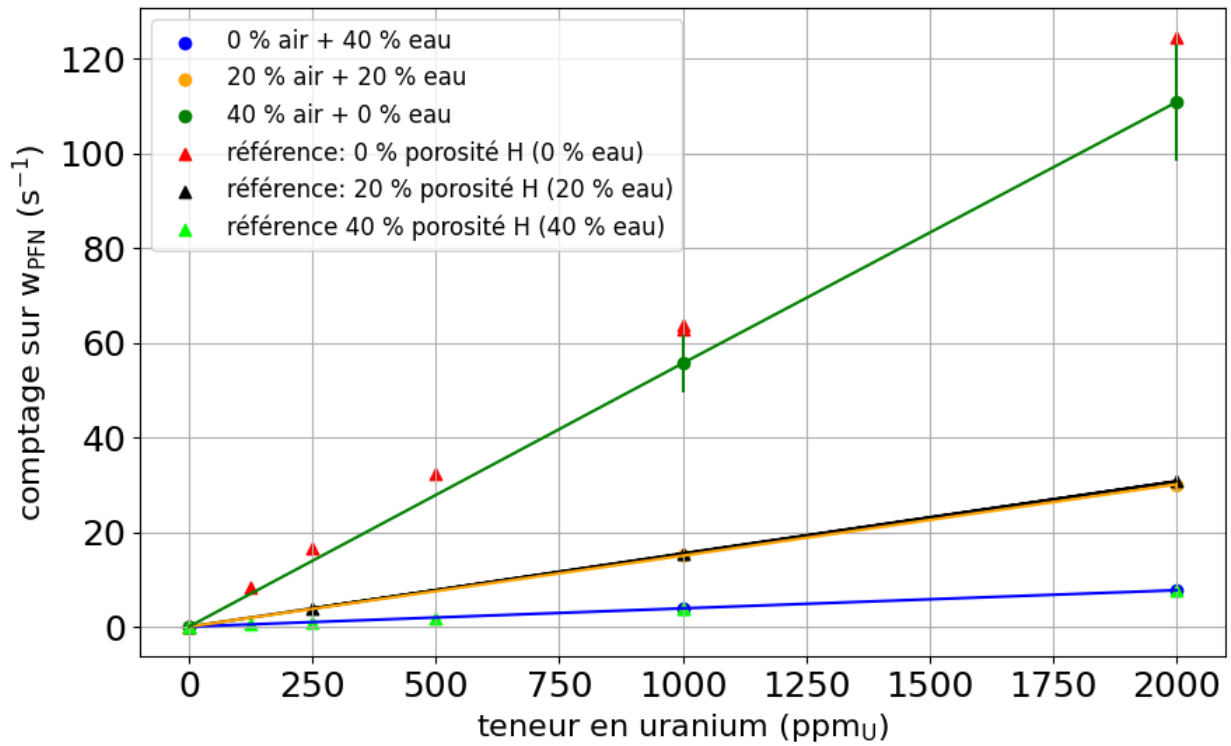


FIGURE A.8 – Effet sur le comptage dans la fen tre w_{PFN} du remplissage par de l'air ou de l'eau des pores d'une formation de silice SiO_2 de porosit  totale 40 % (fraction de volume occup e par les pores).

Annexe F : Évolution du spectre neutronique au cours d'un cycle d'émission

Dans cette annexe, on s'intéresse à la contribution des neutrons dans le signal mesuré, en fonction de leur énergie et de l'instant au sein de la séquence de mesure. Il est possible via la simulation numérique de compter séparément les neutrons en fonction de leur énergie à un moment donné de leur parcours dans l'espace de simulation. Cela nous donne une indication sur la dynamique de thermalisation et l'effet des différents éléments de l'outil. Cette annexe présente différents spectres en énergie dans la géométrie de référence présentée dans ce document. La séquence d'émission du générateur est une impulsion de $50 \mu\text{s}$ commençant à $t = 0$, suivie d'un temps de comptage sans émission de 4.95 ms , soit un rapport cyclique de 1% . Ce qui nous intéresse est la dynamique de thermalisation et la construction du signal mesuré pendant l'impulsion et juste après celle-ci, soit sur la fenêtre w_H . La figure A.9 montre le spectre obtenu à 4 instants distincts : au début de l'impulsion ($t = 10 \mu\text{s}$), à la fin de l'impulsion ($t = 50 \mu\text{s}$), juste après l'arrêt du générateur ($t = 52 \mu\text{s}$) et plus loin dans la fenêtre w_H ($t = 200 \mu\text{s}$).

Sur la figure A.9, les différents spectres représentent la distribution en énergie des neutrons aux différents instants mentionnés et sur différentes surfaces :

- la courbe noire représente la distribution en énergie du flux neutronique incident au bloc de détection, traversant une surface enveloppant le blindage en cadmium. En première approximation on peut considérer que ce spectre est représentatif des neutrons dans l'environnement de mesure.

- la courbe rouge représente la distribution en énergie du flux neutronique à travers le blindage en cadmium. On constate l'effet de seuil et le filtrage du cadmium sur les neutrons dont l'énergie est inférieure à 0.5 eV . L'ensemble de la gaussienne correspondant aux neutrons thermiques est atténuée de presque deux décades.

- la courbe en bleu représente la distribution en énergie du flux neutronique à la surface du compteur ^3He , soit après le filtrage opéré par le cadmium et la thermalisation du polyéthylène.

- la courbe en vert représente la distribution en énergie des neutrons ayant interagi dans le compteur ^3He , obtenue avec MCNP en convoluant le flux représenté par la courbe en bleu avec les sections efficaces correspondantes (n,tot) dans l' ^3He , c'est-à-dire en calculant le taux de réaction neutronique.

Enfin, la dernière courbe verte du graphique le plus en bas correspond à l'évolution temporelle de l'intégrale de la courbe verte précédente. Il s'agit donc de l'évolution temporelle du comptage instantané obtenu par simulation. On constate la présence d'une composante importante de neutrons rapides du début à la fin d'une impulsion du générateur dont les neutrons de 14 MeV constituent alors une part significative du flux incident. En pratique, cependant, ils ne sont responsables que de quelques pourcents du signal mesuré par le compteur. Une différence appréciable entre les spectres au début de l'impulsion ($t = 10 \mu\text{s}$) et à la fin de celle-ci ($t = 50 \mu\text{s}$) concerne la « bosse » des neutrons thermiques car l'équilibre neutronique¹ n'a pas encore été atteint au bout de $10 \mu\text{s}$. Il ne l'est d'ailleurs pas complètement à $50 \mu\text{s}$ et il faudrait une durée d'impulsion du générateur de plus de $200 \mu\text{s}$ pour l'atteindre, le spectre en énergie restant constant quelle que soit la durée de l'impulsion au-delà de cette valeur (graphes non reportés).

1. on définit ici l'équilibre neutronique lorsqu'il y a autant de gain et de pertes de neutrons entre l'instant t et l'instant suivant ($t + dt$), il n'y a alors plus d'évolution temporelle tant que le terme de gain (en l'occurrence l'émission du générateur) existe.

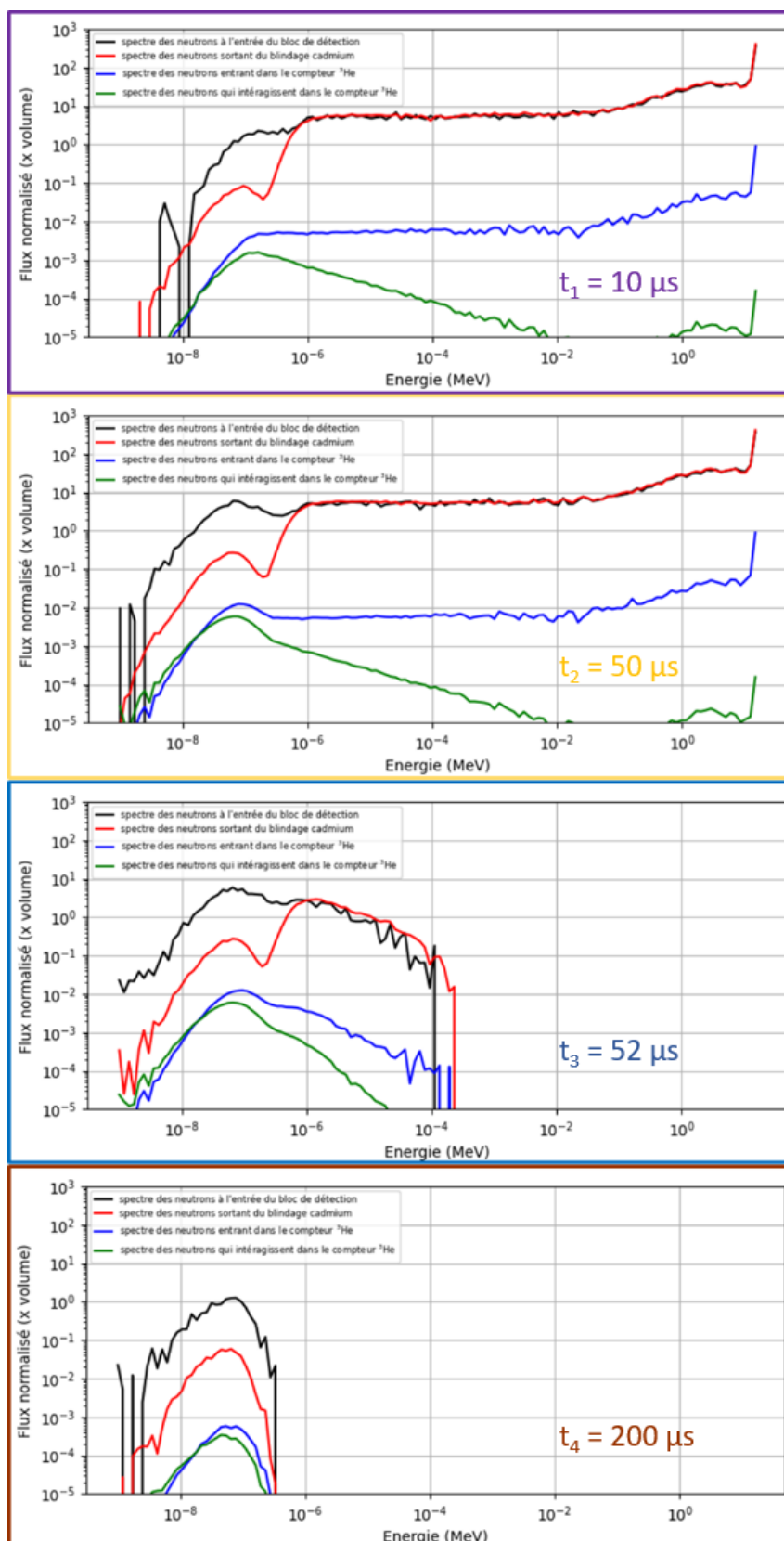


FIGURE A.9 – Spectres en énergie des neutrons à 4 instants différents (10, 50, 52, 200 μs) après le début de l'impulsion.

Sur la figure A.9 qui représente les spectres obtenus après l'impulsion, on constate la disparition soudaine de toute la composante à haute énergie. Plus précisément, il faut moins de $2 \mu\text{s}$ pour que l'ensemble des neutrons rapides passent à une énergie de moins de 100 eV, leur thermalisation complète durant environ $150 \mu\text{s}$ (ne laissant plus que la composante thermique à $t = 200 \mu\text{s}$).

La figure A.10 représente l'évolution de l'intégrale de la courbe verte présente en figure A.9. En ordonnée nous avons représenté le taux de comptage instantané, en abscisse chaque canal de temps vaut $0.5 \mu\text{s}$. Nous avons représenté les instants des 4 spectres neutroniques de la figure A.9 par des droites de même couleur pour faciliter la lecture de cette dernière.

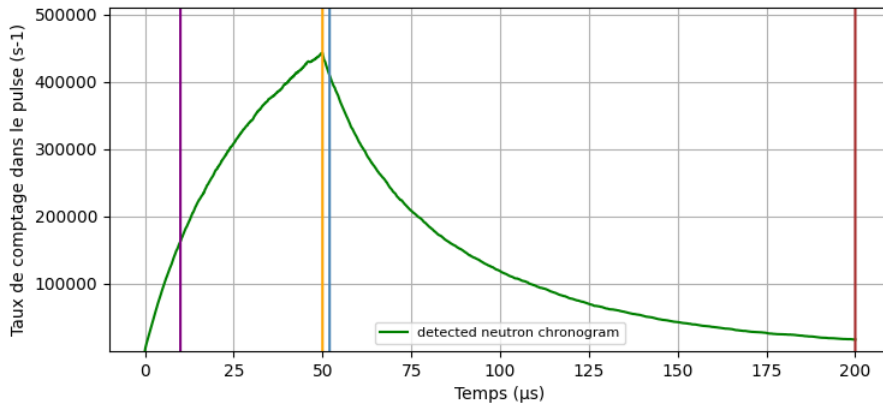


FIGURE A.10 – Chronogramme neutronique du taux de comptage mesuré par le compteur (intégrale de la courbe verte de la figure A.9).

La figure A.11 montre la fraction du signal intégré pendant une impulsion de $50 \mu\text{s}$ du générateur en fonction du seuil de coupure bas en énergie. Un seuil à 10^{-9} MeV (1 meV) permet d'obtenir 100 % du signal. On note par ailleurs que la fraction intégrée dans une fenêtre en énergie placée de 1 à 14 MeV, correspondant essentiellement aux interactions des neutrons rapides par diffusion élastique dans ^3He , ne représente qu'environ 0.5 % du signal total.

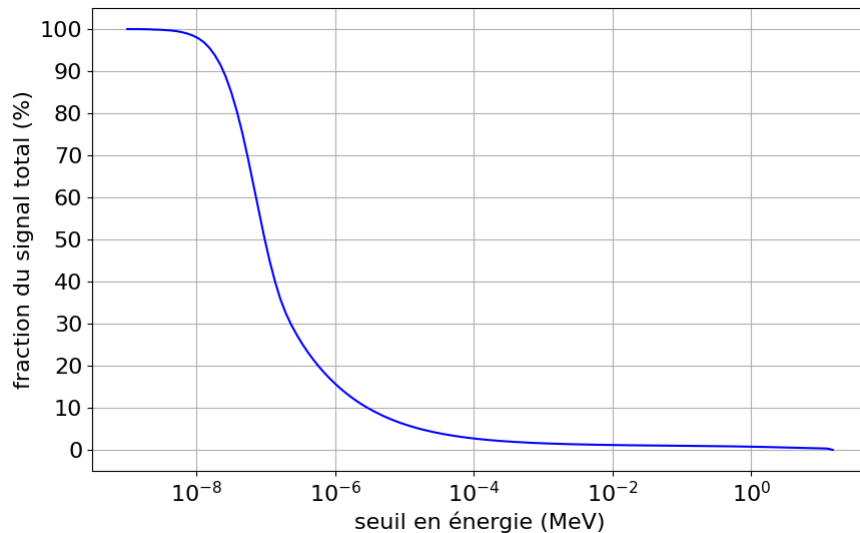


FIGURE A.11 – Cumul du signal neutron intégré sur l'impulsion, en fonction du seuil en énergie.

Annexe G : Mesure de la teneur en uranium du sable de Fontainebleau par spectrométrie γ

Il était nécessaire de mesurer la teneur en uranium naturellement présente dans notre sable de Fontainebleau, pour estimer sa contribution éventuelle au signal de la zone PFN, de 1 à 2 ms après le début du tir. Nous avons donc estimé par spectrométrie γ cette teneur en uranium. Un échantillon de 50 cm³ de sable a été prélevé dans le dispositif de mesure. Nous avons pesé sa masse nette (805 g), pour en déduire la densité apparente de notre sable (1.61). La figure A.12 montre une photographie de notre flacon contenant le sable, dans l'enceinte de mesure bas bruit de fond du laboratoire.



FIGURE A.12 – Photographie de l'enceinte de mesure de spectrométrie γ bas bruit de fond.

Sur la photographie, nous voyons que la partie externe de l'enceinte est constituée de briques de plomb dit « archéologique », c'est à dire de radioactivité bien plus faible que celle du plomb industriel. La partie interne de l'enceinte est constituée de cuivre, afin d'absorber les rayonnements X produits par les particules γ sur le plombs. Le flacon à mesurer est posé sur le capuchon protégeant le cristal de germanium haute pureté. Celui-ci est refroidi à près de -200 °C par le cryo-générateur (modèle *cryo-pulse* de Canberra) positionné sous l'enceinte.

Nous avons réalisé une acquisition de 48 heures, pour un total de 1.85×10^6 coups enregistrés. Le spectre mesuré est tracé sur la figure A.13 ci-dessous. La raie qui nous intéresse a une énergie de 1001 keV, présentée dans l'encadré de la figure. L'air nette de cette raie, c'est à dire en soustrayant les coups du *continuum* Compton, est en première approximation, proportionnelle à l'activité massique de l'uranium 238 contenu dans le sable. En connaissant la masse volumique de l'échantillon, il est possible de remonter à la teneur. Ici nous avons mesuré une teneur de 1.6 ppm_U avec une incertitude associée de 40 %.

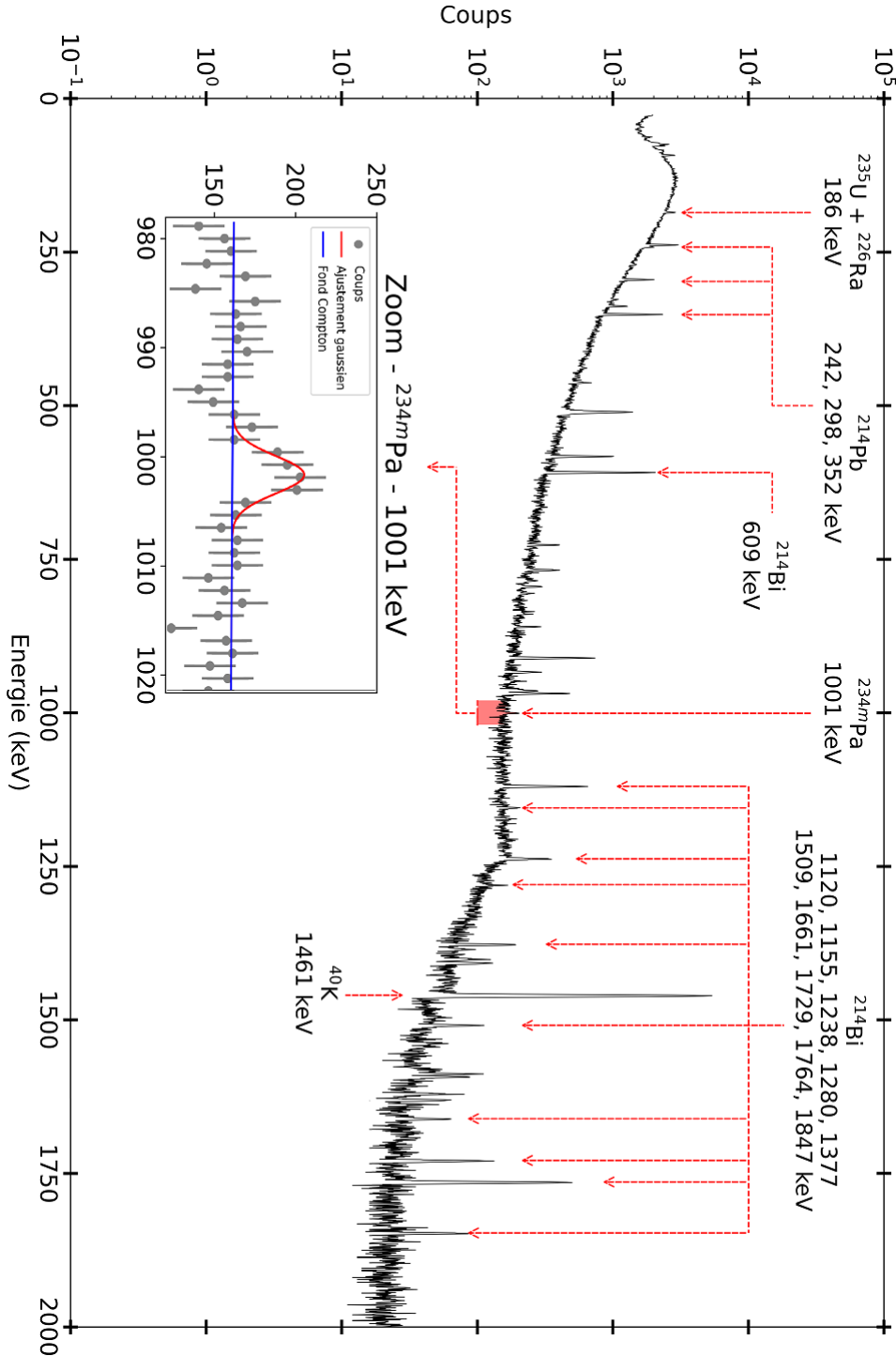


FIGURE A.13 – Spectre γ d'un échantillon de sable de Fontainebleau.

Annexe H : Synthèse comparative entre la simulation et l'expérience, pour le puits en air et en eau

Cette annexe propose de synthétiser les résultats principaux de mesure et de simulation, pour notre campagne expérimentale de 2023 avec le « Tonneau des DANAÏDES ». La figure A.14 superpose ces acquisitions normalisées à un neutron émis par le générateur (grâce au moniteur externe) et le tableau A.1 regroupe les résultats majeurs présentés dans le chapitre 3. Les valeurs de bruits de fond passif et actif sont tirées des acquisitions présentées dans la partie 3.4.2 et présentées dans des unités leur permettant d'être utilisés pour des temps de mesure et des émissions neutroniques moyennes différentes.

Les lignes colorées en verts représentent les mesures ou simulations réalisées avec une plaquette d'uranium. En l'occurrence, il s'agit de la géométrie (α, A) avec la plaquette située à 40 cm au dessus de son support (voir figure 3.39), comme pour les figures 3.57 et 3.58. Les cellules blanches représentent *a contrario* les simulations et mesures réalisées sans uranium. Les mesures sur la fenêtre w_{PFN} sont réalisées entre 1 et 2 ms, celles sur w_H entre 230 et 500 μs , après le début du tir du générateur. Le temps de demi-vie du signal PFN, τ_{PFN} , est mesurée sur la même fenêtre de temps. En ce qui concerne τ_H la fenêtre est légèrement raccourcie, en ne commençant que 300 μs après le début du tir, pour ne pas prendre en compte la première pente de décroissance du signal rétrodiffusé, dans les toutes premières microsecondes après l'arrêt du tir, liée aux neutrons rapides.

Finalement, les mesures avec de l'uranium (cellules vertes), correspondent à des acquisitions réalisées avec une émission de l'ordre de $8 \times 10^7 s^{-1}$, soit 10 fois plus que pour les cellules blanches. Cela engendre des pertes de comptages sur la plage d'intégration w_H . Nous le voyons bien sur la figure A.14, représentant les chronogrammes neutroniques associés à ces valeurs.

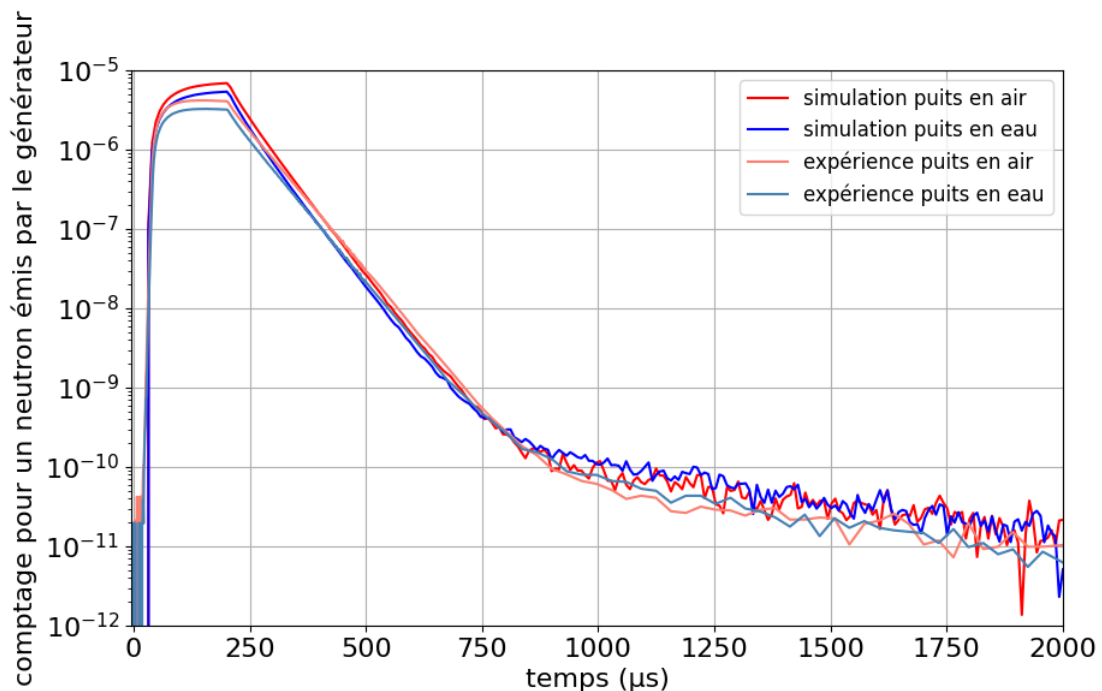


FIGURE A.14 – Chronogrammes neutroniques des mesures et simulations avec uranium, avec le puits en air et en eau, normalisés à un neutron émis par le générateur.

TABIEAU A.1 – Synthèse comparative des mesures et expériences avec puits en eau et en air.

	Expériences				Simulations			
	Puits en air	Incertitudes relatives (%)	Puits en eau	Incertitudes relatives (%)	Puits en air	Incertitudes relatives (%)	Puits en eau	Incertitudes relatives (%)
Bruit de fond passif (s ⁻¹)	6.45×10^{-3}	6.42	7.65×10^{-3}	4.82	7.20×10^{-10}	30.8	7.20×10^{-10}	30.8
Bruit de fond actif ⁱ	3.18×10^{-9}	7.46	1.61×10^{-9}	11.2	7.79×10^{-9}	8.06	3.99×10^{-9}	6.94
Contribution ¹⁷ O								
Signal total sur W_{PFN} ⁱⁱ	1.61×10^3	2.49	1.31×10^3	2.77	1.78×10^3	3.26	2.37×10^3	2.45
Signal net sur W_{PFN} ⁱⁱ	1.46×10^3	2.85	1.22×10^3	3.06	1.75×10^3	3.38	2.33×10^3	2.54
Signal net sur W_H ⁱ	1.44×10^{-4}	3.85×10^{-2}	1.08×10^{-4}	4.26×10^{-2}	1.74×10^{-4}	7.20×10^{-1}	1.29×10^{-4}	8.30×10^{-1}
Signal net sur W_H ⁱ	1.842×10^{-4}	2.16×10^{-2}	1.397×10^{-4}	3.46×10^{-2}	1.73×10^{-4}	7.20×10^{-1}	1.26×10^{-4}	8.40×10^{-1}
τ_{PFN} (μ s)	4.42×10^2	6.97	3.12×10^2	6.08	3.88×10^2	6.42	3.19×10^2	4.20
τ_H (μ s)	4.30×10^1	8.14×10^{-2}	4.24×10^1	1.01×10^{-1}	3.88×10^1	2.06×10^{-1}	3.86×10^1	2.33×10^{-1}
τ_H (μ s)	4.11×10^1	9.74×10^{-2}	4.04×10^1	9.07×10^{-2}	3.85×10^1	1.56×10^{-1}	3.81×10^1	2.63×10^{-1}

mesure ou simulation avec de l'uranium ($\approx 8 \times 10^7$ s⁻¹)
 mesure ou simulation sans uranium (7.52×10^6 s⁻¹)

comptage affecté par du temps mort

ⁱ normalisé à un neutron émis par le générateur

ⁱⁱ acquisition de 600 s, avec un nombre total de neutrons émis respectif de $S_{air}=4.68 \times 10^{10}$ et $S_{eau}=5.11 \times 10^{10}$

Bibliographie

- [1] “France 2030 : un plan d’investissement pour la France”, *Ministère de l’économie des finances et de la souveraineté industrielle et numérique*,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://www.economie.gouv.fr/france-2030>
- [2] “Les activités minières d’orano”, *dossier d’information*, sept 2022,
[En ligne]. Disponible sur :
https://cdn.orano.group/orano/docs/default-source/orano-doc/expertises/producteur-uranium/32p_dp_orano_mining_fr_sept22_ld.pdf?sfvrsn=33004738_10
- [3] T. Marchais, “Optimisation des mesures de spectrométrie gamma pour la prospection de l’uranium”, PhD thesis, Université Grenoble Alpes, Mai 2019,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://inria.hal.science/tel-02366534/>
- [4] V. Fondement *et al.*, “Dispositif d’évaluation en forage d’une teneur en uranium et d’une porosité hydrogène d’une région d’intérêt d’une formation géologique et procédé associé”, dépôt de demande FR2110722, Octobre, 2021.
- [5] C. J. Werner, “Mcnp, user’s manual – code version 6.2 - la-ur-17-29981, rev. 0”, Los Alamos National Laboratory, Tech. Rep., Octobre 2017,
[En ligne]. Disponible sur :
https://mcnp.lanl.gov/pdf_files/TechReport_2017_LANL_LA-UR-17-29981_WernerArmstrongEtAl.pdf
- [6] V. Fondement *et al.*, “Electronics and ^3He counter acquisition tests during the pulses of a D-T neutron generator”, *to be published in IEEE Conference Records*, 2023, 5 - 12 November 2022, IEEE Nuclear Science Symposium.
- [7] —, “Development of a neutron probe to perform a combined measurement of uranium grade and hydrogen porosity for mining applications”, *to be published in NIM A*, 2023.
- [8] Wikipedia, “Uranium”,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://fr.wikipedia.org/wiki/Uranium>
- [9] J. Blanc, “Les mines d’uranium et leurs mineurs français : une belle aventure”, *Annales des Mines - Réalités industrielles*, vol. Août 2008, no. 3, pp. 35–43, 2008,
[En ligne]. Disponible sur :
<http://www.cairn.info/revue-realites-industrielles1-2008-3-page-35.htm>
- [10] IAEA, “Uranium 2020 : Resources, Production and Demand”, 2020,
[En ligne]. Disponible sur :
https://www.oecd-nea.org/upload/docs/application/pdf/2020-12/7555_uranium_-_resources_production_and_demand_2020__web.pdf

- [11] “Code de pratiques écologiques pour les mines de métaux”, Direction générale de l’intendance environnementale du Canada, Tech. Rep., 2009,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://www.ec.gc.ca/lcpe-cepa/documents/codes/mm/mm-fra.pdf>
- [12] “In Situ Leach Mining (ISL) of Uranium - World Nuclear Association”,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://world-nuclear.org/information-library/nuclear-fuel-cycle/mining-of-uranium/in-situ-leach-mining-of-uranium.aspx>
- [13] IRSN, “L’uranium et les risques associés”, 2008,
[En ligne]. Disponible sur :
https://www.irsn.fr/sites/default/files/documents/connaissances/environnement/expertises-incidents-accidents/incident-socatri_2008/irsn_tricastin_note-information-uranium.pdf
- [14] K. Dungan *et al.*, “Uranium from seawater – infinite resource or improbable aspiration?” *Progress in Nuclear Energy*, vol. 99, pp. 81–85, 2017,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0149197017300914>
- [15] “Rare earth elements critical resources for high technology”, *US Geological Survey*, 2002, fact Sheet 087-02,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://pubs.usgs.gov/fs/2002/fs087-02/>
- [16] H. Zafir, S. M. Barbosa and U. Malik, “Differentiation between the effect of temperature and pressure on radon within the subsurface geological media”, *Radiation Measurements*, vol. 49, pp. 39–56, Février 2013,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1350448712003447>
- [17] Wikipedia, “Chaîne de désintégration”,
[En ligne]. Disponible sur :
https://fr.wikipedia.org/wiki/Cha%C3%AEne_de_d%C3%A9sint%C3%A9gration
- [18] Y. Géraud, “Perméabilité des roches et loi de darcy”, *Site des Ressources scientifiques pour l’enseignement des sciences de la Terre et de l’Univers, ENS Lyon*, 2000, université Louis Pasteur, Centre de Géochimie de la surface,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://planet-terre.ens-lyon.fr/ressource/permeabilite-des-roches.xml#:~:text=La%20perm%C3%A9abilit%C3%A9%20d’un%20milieu,d’un%20gradient%20de%20pression>
- [19] M. Z. Abzalov *et al.*, “Resource estimation of *in situ* leach uranium projects”, *Applied Earth Science*, vol. 123, no. 2, pp. 71–85, Juin 2014,
[En ligne]. Disponible sur :
<http://www.tandfonline.com/doi/full/10.1179/1743275814Y.0000000055>
- [20] G. R. Coates, L. Z. Xiao and M. G. Prammer, “NMR logging principles and applications”, *Gulf Publishing Company*, 1999.
- [21] J. Tittman, H. Sherman and W. Nagel, “The Sidewall Epithermal Neutron Porosity Log”, *Journal of Petroleum Technology*, vol. 18, no. 10, pp. 1351–1362, Octobre 1966.

- [22] D. V. Ellis and J. M. Singer, “Basic neutron physics for logging applications”, *Well Logging for Earth Scientists*, pp. 325–349, 2007,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://www.geokniga.org/bookfiles/geokniga-ellis-dv-singer-jm-well-logging-earth-scientists-2008.pdf>
- [23] “The visual editor for MCNPX”,
[En ligne]. Disponible sur :
<http://www.mcnpvised.com/visualeditor/visualeditor.html>
- [24] S. Desai, “Effect of temperature on performance of ^3He filled neutron proportional counters”, vol. 1591, 12 2013.
- [25] U. d. L. Institut Français du Pétrole, “Cours de géophysique en ligne”,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://www-ig.unil.ch/dia41f.htm>
- [26] J.-L. Ma and B. Pérot, “Modèle numérique d’une sonde nai de type ngrs dédiée aux diagraphies gamma. qualification et premières études paramétriques”, CEA, Tech. Rep. CEA/DEN/CAD/DTN/SMTA/LMN/NT/2014- 030-INDICE A, 2014.
- [27] —, “Sonde de diagraphie gamma NGRS pour la prospection de l’uranium : études paramétriques”, CEA, Tech. Rep. CEA/DEN/CAD/DTN/SMTA/LMN/NT 2015-021-INDICE A, 2015.
- [28] C. Carasco *et al.*, “Improving Gross Count Gamma-Ray Logging in Uranium Mining With the NGRS Probe”, *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 65, no. 3, pp. 919–923, Mars 2018,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://hal-cea.archives-ouvertes.fr/hal-01882699/>
- [29] T. Marchais and J.-L. Ma, “Étalonnage par calcul Monte Carlo des sondes de diagraphies de type "KOBRA"”, CEA, Tech. Rep. CEA/DEN/CAD/DTN/SMTA/LMN/NT/2019-017-INDICE A, 2019.
- [30] C. Deyglun *et al.*, “Passive and Active Correlation Techniques for the Detection of Nuclear Materials”, *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 61, no. 4, pp. 2228–2234, Août 2014,
[En ligne]. Disponible sur :
https://www.researchgate.net/publication/268153623_Passive_and_Active_Correlation_Techniques_for_the_Detection_of_Nuclear_Materials
- [31] J. Romeyer Dherby, C. Passard and A. Mariani, *PROMETHEE : a versatile R and D measurement device for low level waste assay*, Singapore : World Scientific Publishing Co Pte Ltd, 1996,
[En ligne]. Disponible sur :
http://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:29038224
- [32] M. Buxreolle, “La source Am-Be (α,n), référence en dosimétrie des neutrons”, CEA, Cadarache, Note CEA 1912, Octobre 1976.
- [33] J. Halfon, P. Albert and B. Borderie, “Mise au point de la méthode analytique par activation à l’aide d’une source isotopique (^{252}Cf) pour les applications aux sciences de la terre, et plus particulièrement à la recherche minière.” 1976,
[En ligne]. Disponible sur :
<http://infoterre.brgm.fr/rapports/76-SGN-221-LAB.pdf>

- [34] “Normes de sûreté de l’AIEA pour la protection des personnes et de l’environnement”, 2012,
[En ligne]. Disponible sur :
https://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/Pub1570f_web.pdf
- [35] *Neutron Generators for Analytical Purposes*, Radiation Technology Reports, Vienna : IAEA, 2012, no. 1.
- [36] C. E. Moss *et al.*, “Survey of Neutron Generators for Active Interrogation”, Tech. Rep. LA-UR-17-23592, 1356115, Mai 2017,
[En ligne]. Disponible sur :
<http://www.osti.gov/servlets/purl/1356115/>
- [37] J. Batur *et al.*, “Temporal and spatial resolution of the neutron probe for C/O nuclear well logging”, *Radiation Physics and Chemistry*, vol. 200, p. 110215, Novembre 2022,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0969806X22002572>
- [38] R. R. Randall, W. F. Fertl and E. C. Hopkinson, “Time-Derived Sigma for Pulsed Neutron Capture Logging”, *Journal of Petroleum Technology*, vol. 35, no. 06, pp. 1187–1191, Juin 1983,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://doi.org/10.2118/9614-PA>
- [39] G. Knoll, *Radiation detection and measurement, 2nd ed*, John Wiley & Sons, 1989,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://indico-tkli.sjtu.edu.cn/event/171/contributions/2123/attachments/982/1592/Knoll4thEdition.pdf>
- [40] V. Bottau, “Optimisation de la mesure neutronique des coïncidences avec des scintillateurs plastique pour la caractérisation des déchets radioactifs”, These de doctorat, Bordeaux, Décembre 2021,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://www.theses.fr/2021BORD0279>
- [41] “Lanthinum Bromide LaBr₃(Ce) | Products | Saint-Gobain Crystals”,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://www.crystals.saint-gobain.com/products/standard-and-enhanced-lanthanum-bromide>
- [42] “ENDF : Evaluated Nuclear Data File”,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://www-nds.iaea.org/exfor/endl.htm>
- [43] “Flexibore”, site Borflex group,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://www.borflex-group.com/industrie/nucleaire/>
- [44] B. Perot, “Optimisation des méthodes de mesure neutronique active pour les déchets radioactifs et contribution à la modélisation d’un dispositif industriel”, PhD thesis, Université Joseph Fourier - Grenoble 1, 1996.
- [45] “RockView service | Baker Hughes”,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://www.bakerhughes.com/evaluation/loggingwhiledrilling-services/wireline-formation-evaluation/formation-lithology-explorer-flex-service/rockview-service>

- [46] H. D. Smith, “Epithermal neutron porosity measurement”, US patent 4625110, Novembre, 1986.
- [47] W. Givens, “Uranium logging in earth formations”, patent US4180729, Décembre, 1979.
- [48] H. Bivens *et al.*, “Direct uranium measurement by the prompt fission neutron method of pulsed neutron borehole logging”, United States, 1979, SAND-78-2345C.
- [49] D. Humphreys *et al.*, “Uranium logging with prompt fission neutrons”, *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, vol. 34, no. 1, pp. 261–268, Janvier 1983.
- [50] C. Skidmore, “Borehole Wire-line Logging for Uranium”, Septembre 2009.
- [51] W. Givens and D. Stromswold, “Prompt fission neutron logging for uranium”, *Nuclear Geophysics*, vol. 3, no. 4, pp. 299–307, 1989.
- [52] H. Scott, C. Flaum and H. Sherman, “Dual Porosity CNL Count Rate Processing”, Septembre 1982, pp. SPE-11 146-MS, [En ligne]. Disponible sur : <https://doi.org/10.2118/11146-MS>
- [53] D. Ellis, C. Case and J. Chiaramonte, “Porosity from neutron logs I : Measurement”, *Petrophysics*, vol. 44, pp. 383–395, Novembre 2003.
- [54] A. Mendoza *et al.*, “Monte Carlo Modeling of Nuclear Measurements In Vertical And Horizontal Wells In the Presence of Mud-Filtrate Invasion And Salt Mixing1”, *Petrophysics*, vol. 48, Février 2007.
- [55] M. Luycx *et al.*, “Simulation of Borehole Nuclear Measurements : A Practical Tutorial Guide for Implementation of Monte Carlo Methods and Approximations Based on Flux Sensitivity Functions”, *Petrophysics - The SPWLA Journal of Formation Evaluation and Reservoir Description*, vol. 61, no. 01, pp. 4–36, Février 2020, [En ligne]. Disponible sur : <https://doi.org/10.30632/PJV61N1-2020T1>
- [56] M. Haschke, *New trends in shallow geophysical/seismic surveying and borehole logging*, Mars 2013, [En ligne]. Disponible sur : https://www.researchgate.net/publication/237202155_New_trends_in_shallow_geophysicalseismic_surveying_and_borehole_logging
- [57] J. L. Conlin and D. K. Parsons, “Release of Continuous Representation for $S(\alpha, \beta)$ ace Data”, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, NM, USA, Tech. Rep. LA-UR-14-21878, 2014, This document is provided in the MCNP6 release package available from RSICC and is not accessible from the MCNP website.
- [58] B. Bedouet and C. Vernet, “Genie 16NG User Manual”, Sodern, Tech. Rep., 2014.
- [59] “Découvrir les tubes neutroniques | Sodern”, [En ligne]. Disponible sur : <https://sodern.com/fr/tubes-neutroniques/>
- [60] C. Eleon *et al.*, “Boron-coated straws imaging panel capability for passive and active neutron measurements of radioactive waste drums”, *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 67, no. 9, pp. 2096–2104, 2020, [En ligne]. Disponible sur : <https://ieeexplore.ieee.org/document/9144298>

- [61] M. Sharma, J. Nattress and I. Jovanovic, “Impact of neutron flux anisotropy from DT generator on radiation shielding effectiveness”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 911, pp. 37–44, Décembre 2018,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900218312348>
- [62] F. Carrel, “Etude et développement d’une technique de dosage des actinides dans les colis de déchets radioactifs par interrogation photonique ou neutronique active et spectrométrie des gamma retardés”, Thèse de doctorat, Université de Caen, 2007,
[En ligne]. Disponible sur :
<http://www.theses.fr/2007CAEN2022>
- [63] J. Bonvalet, D. De Toro and H. Toubon, “Utilisation de tubes CANBERRA ^3He pour la détection des neutrons sous irradiation gamma”, CANBERRA, Tech. Rep. Tech. Rep. NT DD 2007 - 010, 2007.
- [64] V. Fondement, “Méthode et étude paramétrique de mesure d’une sonde neutronique en puits de forage pour la mesure conjointe de la teneur en uranium et de la porosité hydrogène”, CEA, Tech. Rep. CEA/DES/IRENE/DTN/SMTA/LMN/NT/2022-024 INDICE A, 2022.
- [65] T. McDougall *et al.*, *The International thermodynamic equation of seawater – 2010 : calculation and use of thermodynamic properties.*, Intergovernmental Oceanographic Commission Manuals and Guides ; 56, Paris, France : UNESCO, 2015.
- [66] Y. Feng, X. Li and K. E. Gray, “Mudcake effects on wellbore stress and fracture initiation pressure and implications for wellbore strengthening”, *Petroleum Science*, vol. 15, no. 2, pp. 319–334, Mai 2018,
[En ligne]. Disponible sur :
<http://link.springer.com/10.1007/s12182-018-0218-1>
- [67] O. Serra, *Diagraphies différées : bases de l’interprétation*, 1979, vol. chapitre 13 : Mesure de la densité des formations.
- [68] H. Scott, C. Flaum and H. Sherman, “Dual Porosity CNL Count Rate Processing”, vol. All Days, pp. SPE-11 146-MS, 09 1982,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://doi.org/10.2118/11146-MS>
- [69] R. Remetti *et al.*, “In field application of differential die-away time technique for detecting gram quantities of fissile materials”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 870, pp. 123–130, 2017,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900217307647>
- [70] R. J. McConn *et al.*, *Compendium of material composition data for radiation transport modeling*, United States : Pacific Northwest National Lab.(PNNL), Richland, WA (United States), Mars 2011, no. PNNL-15870 Rev. 1,
[En ligne]. Disponible sur :
https://www.pnnl.gov/main/publications/external/technical_reports/PNNL-15870Rev1.pdf

- [71] L. DePavia *et al.*, “A next-generation wireline nmr logging tool”, 04 2013,
[En ligne]. Disponible sur :
https://www.researchgate.net/publication/269045337_A_Next-Generation_Wireline_NMR_Logging_Tool
- [72] A. Sardet *et al.*, “Design of the rapidly relocatable tagged neutron inspection system of the c-bord project”, pp. 1–5, 10 2016,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://hal.science/hal-02418122/document>
- [73] H. de Vries, “The contribution of neutrons to the background of counters used for 14c age measurements”, *Nuclear Physics*, vol. 1, no. 8, pp. 477–479, 1956,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S002955825680062X>
- [74] “Medas cesigma”, ceSigma site web,
[En ligne]. Disponible sur :
<http://www.cesigma.net/ang/carte-medas-A.html>
- [75] Q. Ducasse *et al.*, “Design of micado advanced passive and active neutron measurement system for radioactive waste drums”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 1005, p. 165398, 2021,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S016890022100382X>
- [76] “Foselev”, fOSELEV site web,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://www.foselev.com/>
- [77] F. Loche, “Contrôle des déchets radioactifs et couplage de mesures neutron/gamma : exploitation de la capture radiative pour corriger les effets de matrice pénalisant la mesure de la masse fissile par Interrogation Neutronique Active”, phdthesis, Institut National Polytechnique de Grenoble, 2006,
[En ligne]. Disponible sur :
https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/38/096/38096509.pdf
- [78] J. Czubek, “Pulsed neutron method for uranium well logging”, Cracow, Poland, Avril 1971,
[En ligne]. Disponible sur :
https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/02/012/2012971.pdf
- [79] M. Pillon *et al.*, “Measurement of the $^{16,17}\text{O}(n,p)^{16,17}\text{N}$ cross sections for validating the water activation experiment for ITER at the Frascati neutron generator”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 995, p. 165107, Avril 2021,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900221000917>
- [80] A. Vivier, R. Fottorino and B. Rousse, “Seuil de décision et limite de détection : estimation, interprétation et optimisation. 1^{re} partie : les principes de base”, *Radioprotection*, vol. 45, no. 3, pp. 321–343, Juillet 2010,
[En ligne]. Disponible sur :
<http://www.radioprotection.org/10.1051/radiopro/2010011>

-
- [81] H. Maerten *et al.*, “Advancements in exploration and in-situ recovery of sedimentary-hosted uranium”, 2014,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://www-pub.iaea.org/iaemeetings/cn216pn/Wednesday/Session9/176-Woods.pdf>
- [82] “Code de transport phits”, pHITS site web,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://phits.jaea.go.jp/index.html>
- [83] T. Marchais *et al.*, “Low-resolution gamma spectrometry of uranium ores to determine u concentration and u/rn imbalance”, *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 69, no. 4, pp. 761–767, 2022,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://ieeexplore.ieee.org/document/9620038>
- [84] P. G. Allinei *et al.*, “Estimation of uranium concentration in ore samples with machine learning methods on HPGe gamma-ray spectra”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 1032, p. 166597, Juin 2022,
[En ligne]. Disponible sur :
<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900222001851>
- [85] I. Kaplan, *Nuclear Physics : Chapter 19 : Nuclear Fission*, Addison-Wesley Publishing Company, Inc., Reading, Massachusetts, Palo Alto, London, 1955.
- [86] W. Givens, “In-situ assaying for uranium in rock formations”, patent US3686503, Août, 1972.
- [87] ———, “Logging technique for assaying for uranium in rock formations”, patent US3828189, Août, 1974.
- [88] ———, “Method for uranium exploration employing radioactive reconnaissance and assay logging”, patent U3845299, Octobre, 1974.

Abstract

This PhD in the frame of CEA - ORANO Mining collaboration, aims to develop a new logging tool, based on neutron active interrogation, in the scope of uranium exploration and exploitation. A large amount of its production comes from In situ recovery mines, by leaching chemically the ore in the ground over hundreds of meters. It is mandatory to determine the amount of uranium available, but also the permeability of the sand, to evaluate the profitability. This geological quantity can be assessed from the measurement of the porosity hydrogen which is the volume fraction of water in the rock formation. It is possible to measure this one by using neutron probes. Uranium, and especially its ^{235}U isotope, can also be measured with that kind of logging tool if it relies on a pulsed neutron generator. This research leads to a new probe design that allows performing both measurements with a unique cadmium-shielded-helium 3-proportional counter. The generator emits a $50\ \mu\text{s}$ neutron burst every 5 ms (at 200 Hz). In the $800\ \mu\text{s}$ after the salvo, we can measure the not-fully-thermalized neutrons, thanks to the cadmium shield acting like a filter. The obtained count is inversely proportional to the hydrogen, and water, environment content. Over the following milliseconds, thermal neutrons of the rock formation will lead to ^{235}U nuclei fissions, which emit an average of 2.5 prompt fission neutrons. A chunk of these neutrons is emitted toward our counter, as the neutrons from the generator, fully thermalized after $800\ \mu\text{s}$, cannot cross the cadmium. Thanks to that double energy-time discrimination, it is possible to measure the prompt fission neutron signal contribution, which is proportional to the uranium concentration. As thermal neutrons are absorbed by the hydrogen content in the environment, we can use the porosity hydrogen measurement to correct the prompt fission neutrons signal from its effect. Furthermore, a parametric study has been conducted, using the Monte-Carlo simulation code MCNP 6.1, to compare the quantities that affect the measurements performances (e.g. diameter, standoff, casing thickness, casing, mudcake thickness, lithology). Finally, the new measurement method's feasibility has been validated through two experimental campaigns : On one hand, the capability of the electronics to handle input count rates in the $10^6\ \text{s}^{-1}$ yield, during and right after a pulse of the neutron D-T generator. On the other hand, a laboratory model of the neutron probe has been built and tested in a dedicated calibration drum, filled with 1.6 t Fontainebleau sand. An agreement between experiment and computer simulations has been found, which validates the uranium concentration measurement and allows the understanding of the main components of the active background. This study highlighted the contribution of the oxygen 17 activation delayed neutrons, in the water-saturated sandstone environments. The signal and noise analysis methods were qualified, leading to the first estimations of in situ performances, like the detection limit of the uranium concentration measurement, from 10 to 200 ppm for 3 min of acquisition, for hydrogen porosities ranging respectively from 0 to 40 %.

Résumé

Cette thèse s'inscrit dans le cadre d'une collaboration entre le CEA et ORANO Mining avec pour objectif de développer une nouvelle sonde diagraphique basée sur l'interrogation neutronique active, dans le cadre de l'exploration et de l'exploitation de l'uranium dont une part importante de la production provient aujourd'hui de mines utilisant la lixiviation in situ. L'extraction chimique du minerai s'effectue directement dans le sol, sur plusieurs centaines de mètres, par injection et collection de solutions chimiques. Pour évaluer la rentabilité du puits, il est non seulement nécessaire de connaître la quantité d'uranium disponible, mais aussi la perméabilité du milieu géologique. Cette dernière est déterminée en mesurant la « porosité hydrogène », à savoir la fraction volumique de la roche occupée par de l'eau, à l'aide de sondes qui émettent puis mesurent des neutrons ayant diffusé sur les noyaux d'hydrogène. L'uranium, et plus précisément son isotope 235, est aussi mesurable à l'aide de sondes équipées d'un générateur de neutrons pulsé. Ces travaux de recherche ont abouti à la conception d'une sonde permettant de réaliser ces deux mesures avec un unique compteur proportionnel à hélium 3 entouré de polyéthylène et blindé avec du cadmium. Des impulsions de neutrons de durée $50 \mu\text{s}$ sont émises par le générateur toutes les 5 ms (à 200 Hz). Puis, au cours des $800 \mu\text{s}$ qui suivent l'arrêt de chaque tir, on mesure les neutrons diffusés dans la formation qui ne sont pas thermalisés entièrement et peuvent encore franchir le blindage en cadmium. On obtient un comptage inversement proportionnel à la quantité d'hydrogène présente dans l'environnement. Sur les millisecondes qui suivent, les neutrons thermiques encore présents dans la roche font fissionner des noyaux d' ^{235}U , ce qui émet en moyenne 2.5 neutrons prompts par fission. Une partie de ces derniers sont mesurés par le bloc de détection, tandis que les neutrons du générateur, devenus thermiques $800 \mu\text{s}$ après l'arrêt du tir, ne peuvent plus franchir le blindage en cadmium. Grâce à cette double discrimination, temporelle et énergétique, on peut mesurer le signal des neutrons prompts de fission qui est proportionnel à la concentration en uranium. Le flux de neutrons thermiques interrogateurs étant absorbé par l'hydrogène présent dans l'environnement, on utilise la porosité hydrogène mesurée pour corriger le signal des neutrons prompts de fission. Après avoir étudié par simulation Monte-Carlo les grandeurs affectant les performances de ces deux mesures (diamètre de forage, décentrage de la sonde, épaisseur et matériau de tubage, gangue de boue, lithologie), nous avons validé expérimentalement leur faisabilité en laboratoire. Tout d'abord, plusieurs chaînes d'acquisition ont été testées pour pouvoir mesurer des taux de comptage instantanés de l'ordre de 10^6 s^{-1} , pendant et juste après chaque tir du générateur de neutrons. D'autre part, une sonde maquette de laboratoire a été réalisée et testée dans un fût d'étalonnage rempli de 1.6 t de sable de Fontainebleau, spécialement conçu pour ces essais. Un bon accord entre l'expérience et les simulations a permis de valider la mesure de teneur en uranium et d'appréhender de nouveaux phénomènes, notamment l'activation de l'oxygène 17 responsable d'un bruit d'un fond actif significatif dans les formations siliceuses saturées en eau. La qualification des méthodes de calcul du signal et du bruit a été menée à bien, ce qui a permis d'estimer les performances prévues en situation réelle, notamment des limites de détection entre 10 et 200 ppm en 3 min de mesure pour des porosité hydrogènes respectives de 0 et 40 %.