



HAL
open science

Optimisation de la mesure neutronique des coïncidences avec des scintillateurs plastique pour la caractérisation des déchets radioactifs

Vincent Bottau

► **To cite this version:**

Vincent Bottau. Optimisation de la mesure neutronique des coïncidences avec des scintillateurs plastique pour la caractérisation des déchets radioactifs. Astrophysique [astro-ph]. Université de Bordeaux, 2021. Français. NNT : 2021BORD0279 . tel-04713992

HAL Id: tel-04713992

<https://theses.hal.science/tel-04713992v1>

Submitted on 30 Sep 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 PRÉSENTÉE
POUR OBTENIR LE GRADE DE
DOCTEUR DE
L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX

ÉCOLE DOCTORALE : **Sciences Physiques de l'Ingénieur**

SPÉCIALITÉ : **Astrophysique, plasmas, nucléaire**

Par Vincent BOTTAU

**Optimisation de la mesure neutronique des coïncidences avec
des scintillateurs plastique pour la caractérisation des déchets
radioactifs**

Sous la direction de : Igor TSEKHANOVICH et Bertrand PEROT

Encadrée par : Cyrille ELEON et Cédric CARASCO

Soutenue le 02/12/2021

Membres du jury :

M. TSEKHANOVICH, Igor	Professeur, Université de Bordeaux,	Directeur de thèse
M. DESSAGNE, Philippe	Directeur de recherche, IPHC	Rapporteur
M. ANGELIQUE, Jean-Claude	Professeur, LPC Caen	Rapporteur
Mme. MICHELET, Claire	Maîtresse de conférences, CENBG	Examineur
M. LYOUSSI, Abdallah	Professeur, INSTN, CEA Cadarache	Examineur

Remerciements

Par la présente, je tiens à remercier les nombreuses personnes qui m'ont permis de réaliser cette thèse, sur le plan professionnel mais aussi sur le plan personnel.

Je tiens tout d'abord à remercier les membres du jury, en premier lieu **Abdallah Lyoussi** pour avoir accepté la responsabilité de la présidence du jury. Je remercie également **Claire Michelet** d'avoir accepté de relire ce manuscrit ainsi que d'examiner mes travaux de thèse, dans la continuité de ma formation au sein du Master Instrumentation Nucléaire de l'Université de Bordeaux. Je remercie également mes rapporteurs, **Philippe Dessagne** et **Jean-Claude Angélique**, pour leurs relectures attentives de mon manuscrit et les suggestions et corrections qu'ils ont apportés. Aussi, je souhaite remercier mon co-directeur de thèse, **Igor Tsekhanovich**, qui malgré la distance s'est toujours montré disponible et enthousiaste dans le suivi de mes travaux et m'a délivré de précieux conseils. Je souhaite tous vous remercier pour les agréables commentaires et compliments que vous m'avez adressés. Ceux-ci me confortent dans ma vocation et dans ma volonté de poursuivre ma carrière dans la recherche en mesures nucléaires.

Cette thèse n'aurait pas eu lieu sans le financement à 100% par mon unité d'accueil. Je tiens ainsi à remercier **l'ensemble du Département de Technologie Nucléaire** et les **acteurs du projet CARAC** qui ont rendu cette thèse possible. Je remercie notamment **Lionel Boucher** dans un premier temps puis **Olivier Gueton** dans un second temps, pour la confiance que vous m'avez accordée durant vos mandats respectifs de chef de projet. Je tiens aussi à remercier **Fanny Jallu**, ex cheffe du Laboratoire de Mesures Nucléaires, pour m'avoir fait confiance en me recrutant ainsi que pour avoir suivi la première partie de mes travaux de thèse. Dans ce sens, je souhaite aussi remercier **Christophe Roue** qui a pris la suite en tant que manager, et avec qui j'apprécie toujours autant discuter. Merci pour ton caractère jovial, réconfortant et positif que tu exprimes en toutes circonstances, et qui m'a fait le plus grand bien.

Je voudrais remercier également l'ensemble des membres de l'équipe d'encadrement au sein du laboratoire, **Bertrand Pérot** en tant que directeur de thèse, **Cyrille Eleon** et **Cédric Carasco** comme encadrants, mais aussi tous les trois en tant qu'amis. Merci tout d'abord de m'avoir fait confiance, d'avoir perçu mon potentiel alors qu'à l'origine je ne pensais pas être capable de soutenir ce diplôme. Merci pour votre soutien indéfectible, d'autant plus dans mes périodes de doutes. Merci encore une fois pour votre immense disponibilité, pour avoir répondu à mes questions, pour m'avoir formé et avoir fait de moi le « jeune » chercheur que je suis devenu. Je ne pouvais pas rêver d'un meilleur cadre, ne pouvais pas imaginer de personnes plus altruistes et plus attentives pour me suivre dans mes travaux. Vous m'avez grandement aidé à extraire le meilleur de moi-même. Merci infiniment.

Je ne peux écrire ces remerciements sans t'inclure en leurs seins, **Roberto De Stefano**. Je tiens à te dire que j'ai grandement apprécié notre travail commun. Je garde en mémoire notre entraide, nos brainstormings avec les scintillateurs plastique et les diverses électroniques... et bien sûr notre code commun de développement, TraCNR, tel que tu l'as brillamment nommé ! Nos échanges au cours de nos deux années communes de thèse nous ont tous deux fait grandir. Je te souhaite le meilleur pour la suite.

Je souhaite également remercier **Joël Loridon**, pour sa grande disponibilité afin de me permettre la réalisation de certaines expérimentations dans des délais brefs. Merci également pour ta bonne humeur et pour m'avoir fait rire de bien nombreuses fois ! Je te souhaite de belles dernières années de travail, suivie d'une retraite bien méritée (parce que les « petits cons » du laboratoire se doivent de respecter leurs aînés !).

Merci à **Lionel Tondut**, expert en mesures nucléaires à Orano La Hague, grâce à qui la collaboration sur une étude d'un spectre gamma de plutonium a mené à ma toute première publication en revue à comité de lecture, en tant que 1^{er} auteur. Une première publication, qui je l'espère, ouvrira la voie à beaucoup d'autres ! J'ai grandement apprécié nos échanges ainsi que tes conseils, car ceux-ci m'ont grandement motivé dans la réalisation de mes premiers travaux. J'espère que nous aurons l'occasion de collaborer à nouveau, à l'avenir.

Je souhaite également transmettre mes remerciements à **David Etasse**, chef du projet FASTER au LPC Caen, dont la disponibilité à toute épreuve pour partager son expertise technique en électronique, en présentiel comme en distanciel, a grandement contribué à l'élaboration de mes travaux expérimentaux de thèse. Merci également pour les améliorations que tu as apportées au logiciel d'acquisition et qui m'ont fait gagné un temps très précieux en dernière année de thèse. J'espère de tout cœur que nos routes se recroiseront !

Je tiens également à te remercier, **Lise Isnel**, brillante jeune physicienne, mais rayonnante également de par ses qualités humaines et que j'ai eu la chance de superviser dans le cadre d'un stage. Je me souviendrai toujours des bons moments que nous avons passés à collaborer sur les simulations et le code de traitement DANSE, dont l'acronyme signe une activité qui te tient à cœur. Ton travail m'a fait gagner un temps considérable pour l'exploitation des données simulées. Merci infiniment, je te souhaite le plus bel épanouissement que la vie puisse t'offrir.

Merci aux jeunes du laboratoire et collègues de la résidence « Le Hameau », **Thomas Marchais, Maëva Maulin, Manon Delarue, Jérémy Roult, Francisco Salvador, Patricia Martin-Perez, Valentin Fondement**, pour la collaboration scientifique sur les recoupements de nos recherches, mais également sur les moments de convivialités que nous avons partagés et que nous partagerons encore je l'espère !

De manière plus générale et un peu plus impersonnelle, je souhaite remercier **l'ensemble des acteurs du Labotatoire de Mesures Nucléaires** pour m'avoir permis une intégration très rapide en votre sein, et ce, dès mon stage de fin d'études. Je vous remercie pour tous les échanges que nous avons eus sur les plans professionnels et personnels. Merci pour l'ambiance que vous faites régner au quotidien et qui m'a donné le sourire aux lèvres chaque matin avant de vous rejoindre. Merci également pour l'esprit solidaire dont vous avez fait preuve aux cours de ces périodes noires que nous avons tous traversées en 2020 et 2021. Malgré la distance et les périodes de télétravail, rien n'a changé au fil des années !

Sur le plan personnel, je voudrais remercier **mes amis Lyonnais** que je ne vois pas assez ! Merci pour votre soutien sans failles, pour les belles années passées ensemble ainsi que celles que nous passerons à l'avenir. Merci d'avoir été compréhensifs et compatissants, et d'avoir été présents pour moi dans les meilleurs moments comme dans les plus difficiles. Le bien-être que je ressens à vous côtoyer et à vous savoir présent avec moi a été un acteur majeur dans le bon déroulement de mes travaux.

Je conclus à présent ces remerciements en m'adressant chaleureusement aux **membres de ma famille**. Vous avez toujours cru en moi. Votre amour me transcende au quotidien et me donne la force de toujours m'améliorer, de donner le meilleur de moi en chaque instant. La reconnaissance que je vous témoigne est sans limites. Par l'écriture de ces quelques mots, mes pensées se tournent vers ma mère et mon grand-père. Vos principes, les belles qualités que vous m'avez transmises, la fierté que vous éprouviez à mon égard et votre indéfectible croyance en moi ont forgé l'homme que je suis aujourd'hui. J'aurais aimé vous avoir à mes côtés, pour que vous puissiez vivre avec moi ce qui est le plus bel accomplissement de mon existence. Le souvenir de votre amour est mon plus bel héritage et le plus puissant moteur de ma motivation. J'honorerai votre mémoire en chaque instant et en chaque lieu. Ce présent ouvrage, dans lequel réside nombre de mes efforts, vous est dédié.

*« La sagesse, c'est d'avoir des rêves suffisamment grands
pour ne pas les perdre de vue lorsqu'on les poursuit »*

Oscar Wilde

À ma mère,
À mon grand-père,

SOMMAIRE

Liste des Figures.....	11
Liste des Tableaux.....	15
Introduction générale	19
Chapitre 1 – Etat de l’art sur les mesures neutroniques passives et positionnement de la thèse ...	21
1. Introduction.....	21
1.1 La caractérisation des déchets radioactifs	21
1.2 Mesures passives et mesures actives	21
1.3 La pénurie mondiale en gaz hélium 3	22
2. Les mesures neutroniques des déchets radioactifs.....	23
2.1 Comptage neutronique total ou des coïncidences avec des compteurs à hélium 3	23
2.1.1 Origine des neutrons	23
2.1.2 Comptage neutronique total.....	25
2.1.3 Comptage des coïncidences neutroniques.....	26
2.1.4 Comptage neutronique des multiplicités.....	28
2.2 Critères de performance d’un dispositif de mesure neutronique passive.....	30
2.2.1 Efficacité de détection.....	30
2.2.2 Durée de détection moyenne des neutrons dans le système.....	30
2.2.3 Temps mort	30
2.2.4 Sensibilité aux rayonnements gamma.....	30
2.3 Exemples de systèmes pour les mesures de colis de déchets	31
3. Recherches d’alternatives aux compteurs à hélium 3.....	32
3.1 Introduction aux recherches d’alternatives.....	32
3.2 Compteurs gazeux et à dépôt de bore.....	32
3.3 Détecteurs à scintillation	34
3.3.1 Les scintillateurs inorganiques.....	34
3.3.2 Les scintillateurs organiques liquides	34
3.3.3 Les scintillateurs à base de cristaux organiques.....	38
3.3.4 Les scintillateurs à base de verres organiques	39
3.3.5 Les scintillateurs organiques plastiques.....	39
3.4 Choix des scintillateurs au PVT pour la caractérisation des colis de déchets	41
4. Travaux antérieurs liés directement à la thèse.....	41
4.1 Méthode de dénombrement des multiplicités.....	41
4.2 Dispositif expérimental et simulations	42
4.3 Traitement de la diaphonie	44
4.4 Résultats et limites identifiées	44
5. Positionnement de la thèse	47
Références bibliographiques du chapitre 1	49
Chapitre 2 – Méthode de discrimination temporelle des coïncidences par analyse des temps de vol	

1. Dispositif experimental des 1^{er} essais	57
1.1 Présentation du système de mesure	57
1.1.1 Détecteurs.....	57
1.1.2 Sources radioactives utilisées pour l'étude	57
1.1.3 Système d'acquisition de données	59
1.2 Etalonnage en énergie	59
1.3 Résolution temporelle.....	61
1.4 Code d'analyse des données TraCNAR	64
2. Analyse des résultats expérimentaux	65
2.1 Méthode du registre à décalage	65
2.2 Méthode innovante de discrimination des coïncidences utiles et parasites.....	67
3. Apport de la simulation numérique	71
3.1 Le code MCNPX-PoliMi.....	71
3.2 Modélisation de la géométrie et des sources	71
3.3 Traitements des données simulées	72
3.4 Comparaison expérience/calcul.....	74
3.5 Exploitations complémentaires des fichiers MCNPX-PoliMi	76
4. Limites du système d'acquisition.....	81
Références bibliographiques du chapitre 2	85
Chapitre 3 – Application de la discrimination temporelle des coïncidences pour la caractérisation du plutonium dans les fûts de déchets radioactifs.....	87
1. Introduction.....	87
2. Nouveau dispositif experimental pour fûts de déchets radioactifs	87
2.1 Evolution du système de détection	87
2.2 Sources Radioactives.....	89
2.3 Electronique d'acquisition des données FASTER	90
2.4 Evaluation du bruit de fond	91
3. Mesures et simulations avec les matrices organique et métallique	98
3.1 Efficacité de détection	98
3.2 Comparaisons expérience/calcul	100
3.2.1 Modélisation MCNPX-PoliMi de la géométrie et des sources	100
3.2.2 Comparaison expérience/calcul avec la méthode du registre à décalage.....	101
3.2.3 Comparaison expérience/calcul avec la méthode de discrimination temporelle des coïncidences	104
3.3 Effets de matrice et de localisation.....	108
3.3.1 Evaluation expérimentale.....	108
3.4.1 Evaluation des effets de localisation par simulation numérique.....	113
3.5 Optimisation de l'analyse des données	117
3.5.1 Optimisation de l'analyse des données sans écran de plomb.....	117
3.5.2 Etude par simulation du rejet de la diaphonie à ratio alpha croissant.....	126
3.5.3 Réglages optimaux en fonction du taux de comptage total et du ratio alpha.....	132

3.6 Performances avec la configuration optimale	132
3.6.1 Résultats expérimentaux avec l'écran de plomb et la matrice métallique	132
3.6.2 Résultats expérimentaux avec l'écran de plomb et la matrice organique	134
3.6.3 Limites de détection	137
Conclusion du chapitre 3.....	138
Références bibliographiques du chapitre 3	140
Conclusion générale et perspectives	149
Annexes	151
Annexe 1 : Mathématiques du comptage des multiplicités.....	151
Annexe 2 : Premières étapes de prétraitements des données avec TRACNAR.....	156
Annexe 3 : Etude du facteur limitant pour les acquisitions de données avec le système CAEN (DT5730 + CoMPASS)	158
Annexe 4 : Résultats Détaillés de la Comparaison expérience/calcul avec les mesures des Sources séparées	162
Annexe 5 : Résultats détaillés de la Comparaison expérience/calcul pour les mesures des Sources ensemble.....	166
Annexe 6 : Evaluation de diverses incertitudes de modélisation.....	168
Annexe 7 : Résultats détaillés des mesures avec la matrice organique et sans écran de plomb	171
Annexe 8 : Résultats détaillés des mesures avec l'écran de plomb pour les matrices métallique et organique.....	175
Annexe 9 : Limites de détection	179
Annexe 10 : Comptages corrigés dans les ROI pour les études de proportionnalité avec différents ratios alpha, en simulation	181

LISTE DES FIGURES

Figure 1. Spectre de Maxwell des neutrons émis par une source de californium 252 [Ensslin1991_11].	24
Figure 2. Courbe de Rossi-alpha issue de la simulation (à gauche [Porcher2013]) et d'une mesure (à droite [Ensslin1991_11]) d'une source de californium 252.	27
Figure 3. Illustration de la méthode du registre à décalage pour le comptage des multiplicités. M_0 représente l'ordre de multiplicité 0 (aucune impulsion coïncidente avec l'impulsion initiatrice de la fenêtre de coïncidence R+A), M_1 l'ordre 1 (une impulsion en coïncidence avec celle initiatrice de la fenêtre, donc une paire), etc.	28
Figure 4. Effet des empilements d'impulsions de rayonnements gamma sur le comptage neutronique avec des compteurs à hélium-3 (tube de 2.54 cm de diamètre et 50.8 cm de longueur) [Perot1996].	31
Figure 5. Illustration et modélisation MCNP du poste de mesure neutronique des coïncidences de l'INB PEGASE, au CEA Cadarache [Jallu2011] [DEN2019].	31
Figure 6. Illustration du WM3100, un HENC commercialisé par Mirion Technologies [Mirion_WM3100].	32
Figure 7. (a) Illustration d'un module de détection du HNLB et sa composition ; (b) Illustration des dispositifs complets du HLNCC-II et du HNLB [Henzlova2015].	33
Figure 8. (a) Niveau d'énergie d'une molécule organique ayant une structure en liaison π -électron et mode de désexcitation associés des états singulets et des états triplets; (b) formes des impulsions générées par les rayonnements gamma, les particules alpha et les neutrons dans un scintillateur organique au stilbène [Knoll1989].	35
Figure 9. Discrimination neutron-gamma pour des mesures de sources de californium 252 avec des scintillateurs liquides cylindriques de type EJ-309 (7.62 cm x 7.62 cm) [EJ-301-309]. A gauche, la discrimination est réalisée en représentant la PSD (voir définition dans le texte) en fonction de l'énergie équivalente électron (MeVee, voir texte) associées à chaque impulsion [Ellis2013]. A droite, la discrimination est effectuée en représentant Q_{long} en fonction de $Q_{long} + Q_{short}$. Les fenêtres d'intégration de charge Q_{short} et Q_{long} sont ici respectivement de 40 ns et 220 ns [Paff2016].	36
Figure 10. (a) Discrimination neutron-gamma pour des mesures de sources de californium 252 avec des scintillateurs liquides cylindriques de type EJ-309 (7.62 cm x 7.62 cm) ; (b) Distribution des PSD gamma et neutron dans une gamme d'énergie donnée [Ellis2013].	36
Figure 11. Histogrammes de discrimination neutron-gamma par PSD avec la méthode de comparaison des charges pour une source de californium 252 mesurée avec un scintillateur liquide EJ-309 cylindrique de dimensions (a) \emptyset 7.62 cm x L 7.62 cm, (b) 12.7 cm \emptyset X 12.7 cm et (c) un parallélépipède de 25 cm x 25 cm x 10 cm [Paff2016].	37
Figure 12. (a) Le dispositif « Fast Neutron Multiplicity Counter » avec 16 scintillateurs liquides EJ-309 ortho-cylindriques 3" x 3" (\emptyset 7.62 cm x L 7.62 cm) [Dolan2014] ; (b) Modélisation MCNP pour un dispositif de 32 détecteurs cubiques EJ-309 (7.62 x 7.62 x 7.62 cm ³) [Chichester2015].	37
Figure 13. (a) FNMC composé de 24 scintillateurs stilbène ortho-cylindriques 2"x2" (\emptyset 5.08 cm x L 5.08 cm) et (b) histogramme de PSD obtenu pour une mesure d'une source de californium 252 [Shin2018].	38
Figure 14. Courbes de Rossi-alpha pour une source de californium 252 mesurée avec un système de compteurs à hélium 3 (a) [Porcher2013] et avec un système de scintillateurs PVT (b) [Simony2017_b].	39
Figure 15. Méthode de comptage des multiplicités employée au cours des études réalisées par Simony et al. [Simony2016] [Simony2017_b].	42
Figure 16. Exemple d'un fichier de collision obtenu en sortie de simulation avec le logiciel MCNPX-PoliMi. (1 shake = 10 ns).	42
Figure 17. (a) Maquette du poste de mesure pour colis de déchets de 118 litres ; (b) modélisation MCNPX-PoliMi associée ; (c) matrices de remplissage en fer et bois et canaux pour placer les sources [Simony2017_b].	43
Figure 18. Illustration du phénomène de diaphonie entre scintillateurs plastiques et d'une méthode de limitation de cet effet [Simony2017_b].	44
Figure 19. Comparaison des multiplicités d'ordre 1 (paires) et d'ordre 2 (triplets) obtenues avec les sources de californium 252 et d'AmBe, ainsi que du ratio $^{252}\text{Cf} / (^{252}\text{Cf} + \text{AmBe})$ dans le cas des triplets, sans et avec rejet de diaphonie pour les deux ratios alpha de 1.2 et 25 [Simony2017_b].	47
Figure 20. Dispositif expérimental des premiers essais et propriétés des scintillateurs EJ-200 [EJ-200].	57
Figure 21. Diagramme des désintégrations du ^{252}Cf [Laraweb] [Ensslin1991_11].	58
Figure 22. Diagrammes des désintégrations du ^{60}Co (à gauche) et de l'AmBe (à droite) [Laraweb] [Liu2007].	58
Figure 23. Illustration du module DT5730 fabriqué par la société CAEN [CAEN_DT5730].	59
Figure 24. Illustration de la méthode de recherche du front Compton pour l'étalonnage en énergie des scintillateurs plastique. A gauche le modèle MCNP, à droite les spectres en énergie idéal (résolution parfaite, en bleu) et avec la résolution du scintillateur plastique (en rouge) pour une source de ^{137}Cs [Simony2017].	60
Figure 25. Mesure d'une source étalon de ^{137}Cs . Détermination de la valeur (en canaux) du Compton Maximum, pour remonter à la valeur du front Compton théorique [Simony2017].	60
Figure 26. Courbes d'étalonnage en énergie des 8 scintillateurs au plastique PVT.	61
Figure 27. Disposition des détecteurs et de la source de ^{60}Co , pour la mesure des résolutions temporelles par couples de voies. Les détecteurs sont à un rayon de 15 cm de la source.	61
Figure 28. Histogrammes temporels normalisés des coïncidences $\gamma\gamma$ pour des mesures avec source de ^{60}Co en position haute (courbe bleue), à mi-hauteur (courbe noire) et au niveau du sol (courbe rouge).	62
Figure 29. Système composé de petits scintillateurs au plastique PVT de 10x10x10 cm ³ .	63

Figure 30. Histogramme temporel avec ajustement gaussien des coïncidences $\gamma\gamma$ pour une mesure avec la source ^{60}Co en position radiale centrée dans un dispositif de petits scintillateurs plastiques ($10\times 10\times 10\text{ cm}^3$)	63
Figure 31. Illustration d'une cassure dans le rangement temporel des impulsions d'un TTree, intervenant entre deux paquets d'impulsions	64
Figure 32. Courbe de Rossi-alpha pour une mesure de 5 min d'une source de ^{252}Cf (228 kBq)	65
Figure 33. Histogrammes expérimentaux à deux dimensions des intervalles temporels entre les impulsions des coïncidences comprenant au moins 3 impulsions, dans des conditions identiques au Tableau 14. Le premier axe Δ_{2-1} représente l'intervalle temporel entre la 1 ^{ère} et la 2 ^{ième} impulsion de la coïncidence, le second Δ_{3-2} entre la 2 ^{ième} et la 3 ^{ième} impulsion. Une échelle de couleur permet de visualiser les régions les plus peuplées (gamme identique pour les sources de ^{252}Cf , ^{60}Co et AmBe pour faciliter la comparaison). Le pas de segmentation de l'histogramme est de 1 ns sur chaque axe.	67
Figure 34. Intervalles temporels Δ_{3-2} pour la mesure avec la source de ^{252}Cf en sélectionnant les paires formées par les deuxième et troisième impulsions d'une coïncidence triple, lorsque Δ_{2-1} est compris entre 10 ns et 30 ns. L'ajustement exponentiel est réalisé entre 10 ns et 200 ns.	69
Figure 35. Histogrammes expérimentaux des mesures présentées en Figure 33, avec application du rejet de la diaphonie sur des intervalles temporels de 60 ns.	70
Figure 36. Modèle de la géométrie de mesure pour les simulations avec MCNPX-PoliMi.	71
Figure 37. Spectre des rayonnements gamma prompts des fissions spontanées du ^{252}Cf modélisé par PoliMi, utilisé également pour la simulation des rayonnements gamma retardés.	72
Figure 38. Diagramme de conversion des énergies déposées simulées (en MeV) en énergie équivalente de scintillation (MeVee) dans le code de traitements DANSE.	73
Figure 39. Construction du chronogramme d'interdépendance des événements répertoriés dans un fichier de collision MCNPX-PoliMi.	73
Figure 40. Illustration de la forme d'une impulsion et des paramètres utilisés pour la numérisation avec CoMPASS (à gauche) [CAEN_CoMPASS] et méthode de prise en compte de l'intégration de la charge et de la paralysie des voies avec DANSE (à droite).	74
Figure 41. Histogrammes temporels à deux dimensions obtenus par l'expérience (à gauche) et par la simulation (à droite) avec les sources de ^{252}Cf , d'AmBe et de ^{60}Co , sans rejet de la diaphonie. La zone d'intérêt est rappelée par un encadrement pointillé jaune.	76
Figure 42. Différents types de coïncidences séparées grâce aux simulations MCNPX-PoliMi pour la source de ^{252}Cf , sans rejet de la diaphonie.	77
Figure 43. Différents types de coïncidences séparées grâce aux simulations MCNPX-PoliMi pour la source AmBe, sans rejet de la diaphonie.	77
Figure 44. Intervalles temporels Δ_{3-2} pour la simulation de la source de ^{252}Cf en sélectionnant les paires de neutrons formées par les 2 ^{ème} et 3 ^{ème} impulsions, lorsque Δ_{2-1} est compris entre 10 ns et 30 ns.	78
Figure 45. Différents types de coïncidences séparées grâce aux simulations MCNPX-PoliMi pour la source de ^{252}Cf , avec rejet idéal de la diaphonie pendant par paralysie des détecteurs pendant 60 ns.	79
Figure 46. Différents types de coïncidences séparées grâce aux simulations MCNPX-PoliMi pour la source d'AmBe, avec rejet idéal de la diaphonie pendant par paralysie des détecteurs pendant 60 ns.	79
Figure 47. Taux d'enregistrement des données pour les 4 acquisitions de 5 min avec les sources séparées.	82
Figure 48. Taux d'enregistrement des données sur les 5 min d'acquisition avec les 4 sources ensemble.	82
Figure 49. Dispositif de mesure maquette pour fûts de déchets radioactifs de 100 à 220 L.	87
Figure 50. Disposition des sources de ^{252}Cf , AmBe, ^{137}Cs et ^{60}Co dans le système d'instrumentation.	88
Figure 51. Illustration d'une carte mère d'acquisition, de type SYROCO_AMC_C5 (à gauche), comprenant deux cartes filles de type CARAS (à droite) [FASTER].	90
Figure 52. Vue complète de l'électronique d'acquisition FASTER compactée dans un rack.	90
Figure 53. Variation du taux de comptage total des neutrons avec la pression atmosphérique, en fonction de la date de la mesure (13 jours consécutifs en 2012, aux Etats-Unis [Goldhagen2015]).	94
Figure 54. Chronogrammes des instants de déclenchement des multiplicités d'ordre supérieur ou égal à 7 pour la mesure de bruit de fond du 25/02 (à gauche) et du bruit de fond du 29/03 (à droite) dans la configuration de la matrice métallique avec l'écran de plomb de 5 cm d'épaisseur. Le temps par canal est de 0,1 s.	94
Figure 55. Histogramme des intervalles temporels entre chaque événement de multiplicités 7 ou plus dans les données mesurées du bruit de fond du 25/02/21.	95
Figure 56. Détail des neuf premières multiplicités d'ordre 7 et plus dans les trains d'impulsions du bruit de fond du 25/02. Les amplitudes de chaque impulsion indiquent la valeur de l'énergie déposée dans le scintillateur plastique, en keVee.	96
Figure 57. Détail des neuf premières multiplicités d'ordre 7 et plus dans les trains d'impulsions du bruit de fond du 29/03. Les amplitudes de chaque impulsion indiquent la valeur de l'énergie déposée dans le scintillateur plastique, en keVee.	97
Figure 58. Histogrammes temporels des mesures de bruit de fond du 25 février 2021 (à gauche) et du 29 mars 2021 (à droite), en présence de la matrice métallique et de l'écran de plomb de 5 cm.	98
Figure 59. Modélisation du système de mesure au sein de la casemate BIHAN.	100
Figure 60. Artéfacts présents sur un histogramme temporel (à gauche) et la courbe de Rossi-alpha (à droite) d'une mesure de 7 h de bruit de fond (matrice métallique + écran de plomb).	103
Figure 61. Histogramme temporel à deux dimensions issue d'une mesure de 5 min avec une source de ^{252}Cf ($n^{\circ}3$) dans la matrice organique et sans écran de plomb devant les détecteurs.	105

Figure 62. Histogrammes 2D obtenus en mesure (à gauche) et en simulation (à droite) pour la source de ^{252}Cf (n°3) au centre de la matrice métallique (en haut) et de la matrice organique (en bas). L'écran de plomb est ici présent devant les détecteurs. Les échelles de couleurs sont ajustées pour présenter les mêmes gradients en mesure et en simulation. Les histogrammes de mesure sont nets de bruit de fond.....	105
Figure 63. Histogrammes 2D obtenus en mesure (à gauche) et en simulation (à droite) pour la source d'AmBe au centre de la matrice métallique (en haut) et de la matrice organique (en bas), avec écran de plomb. Les échelles de couleurs sont ajustées pour présenter les mêmes gradients en mesure et en simulation. Les histogrammes de mesure sont nets de bruit de fond.....	106
Figure 64. Histogrammes 2D obtenus en mesure (à gauche) et en simulation (à droite) pour la source de ^{60}Co au centre de la matrice métallique (en haut) et de la matrice organique (en bas). Les histogrammes de mesure sont nets de bruit de fond.	107
Figure 65. Positions radiales et axiales du ^{252}Cf pour estimer les effets de localisation dans les deux matrices	109
Figure 66. Coefficients de sensibilité pour la mesure des triplets (à gauche) et pour la mesure des ROI (à droite) avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice métallique (et ajustements polynomiaux d'ordre 2).	110
Figure 67. Coefficients de sensibilité pour la mesure des triplets (à gauche) et pour la mesure des ROI (à droite) avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice organique (et ajustements polynomiaux d'ordre 2).	112
Figure 68. Modélisation MCNPX-PoliMi du système de détection avec fût de déchet centré par rapport aux scintillateurs plastiques (scintillateurs frontaux masqués et ceinture de plomb transparente pour voir le fût).	114
Figure 69. Coefficients de sensibilité pour la simulation des triplets (à gauche) et pour la simulation des ROI (à droite) avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice métallique, avec fût centré (et ajustements polynomiaux d'ordre 2).	115
Figure 70. Coefficients de sensibilité pour la simulation des triplets (à gauche) et pour la simulation des ROI (à droite) avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice organique, (et ajustements polynomiaux d'ordre 2).	116
Figure 71. Courbes de Rossi-alpha de mesures avec une source de ^{252}Cf seule (à gauche) et avec les 4 sources simultanées (^{252}Cf + AmBe + ^{60}Co + ^{137}Cs , à droite) au centre de la matrice organique et sans écran de plomb...	118
Figure 72. Adaptation des fenêtres de coïncidences du registre à décalage sur une courbe de Rossi-alpha issue de la mesure de 10 minutes avec les 4 sources (à gauche), et courbe de Rossi-alpha du bruit de fond (10 min, à droite).	118
Figure 73. Discontinuités des plateaux des coïncidences accidentelles de la courbe de Rossi-alpha pour une mesure avec les sources de ^{252}Cf , AmBe, ^{60}Co et ^{137}Cs , avec rejet de diaphonie pendant 60 ns.	120
Figure 74. Histogrammes temporels à deux dimensions pour les mesures avec la source de ^{252}Cf seule (à gauche) et avec toutes les sources de ^{252}Cf , AmBe, ^{60}Co et ^{137}Cs (à droite). L'échelle de couleur de l'histogramme de droite est dilatée pour mettre en évidence les paliers dus à la fenêtre de 220 ns d'intégration de la charge (le pixel avec le plus de coïncidences, près de l'origine, comporte en fait $4,5 \cdot 10^5$ coups).	121
Figure 75. Paliers des temps morts d'intégration de charge et des rejets de diaphonie dans 60 ns pour l'histogramme temporel à deux dimensions de la mesure avec les sources ^{252}Cf , AmBe, ^{60}Co et ^{137}Cs	121
Figure 76. illustration des différences du point de vue des paliers de rejet de la diaphonie vis-à-vis de la position de la ROI en fonction du temps de rejet de la diaphonie (30 ns à gauche, 60 ns à droite).	122
Figure 77. Illustration des zones utilisées pour l'estimation des coïncidences accidentelles dans la région d'intérêt (ROI) des histogrammes temporels 2D : toutes ces zones ont la même surface que la ROI.	123
Figure 78. Projection de la bande verticale $10 \leq \Delta_{2-1} \leq 30$ ns sur l'axe Δ_{3-2} (à gauche), et projection de la bande horizontale $10 \leq \Delta_{3-2} \leq 30$ ns sur l'axe Δ_{2-1} (à droite), de l'histogramme temporel présenté en Figure 77.	123
Figure 79. Comparaison visuelle des histogrammes temporels à deux dimensions pour les mesures de 10 min avec les 4 sources en simultanée sans écran de plomb (à gauche) et avec l'écran de plomb (à droite).	126
Figure 80. Illustration de la méthode standard de rejet de la diaphonie telle qu'utilisée pour le traitement des mesures (à gauche) et d'un rejet parfait uniquement applicable en simulation (à droite).	126
Figure 81. Régions des coïncidences accidentelles utilisées pour la correction des comptages de la région d'intérêt (ROI).	127
Figure 82. Evolution des comptages bruts simulés dans les ROI en fonction du ratio alpha appliqué avec 10 g de ^{240}Pu	128
Figure 83. Evolution des comptages simulés dans les ROI, corrigés par la méthode des coïncidences accidentelles « éloignées », en fonction du ratio alpha avec 10 g de ^{240}Pu	128
Figure 84. Evolution des comptages simulés dans les ROI, corrigés par la méthode des coïncidences accidentelles « proches », en fonction du ratio alpha avec 10 g de ^{240}Pu	129
Figure 85. Comparaison du traitement actuel (« standard ») de la diaphonie avec le rejet « optimisé ».	130
Figure 86. Correction des accidentelles « éloignées » sans rejet de diaphonie ou avec le rejet standard et le nouveau rejet optimisé.	131
Figure 87. Correction des accidentelles « proches », sans rejet de la diaphonie ou avec le rejet standard et le nouveau rejet optimisé.	131
Figure 88. Surestimation du signal utile en fonction du ratio alpha, en présence des sources neutroniques seules (^{252}Cf ou ^{240}Pu + AmBe) pour la matrice métallique.	134
Figure 89. Surestimation du signal utile en fonction du ratio alpha, en présence des sources neutroniques seules (^{252}Cf ou ^{240}Pu + AmBe) pour la matrice organique.	136
Figure 90. Diagramme de l'algorithme de tri par <i>timestamp</i> croissants de l'ensemble des 8 fichiers binaires obtenus lors des acquisitions avec CoMPASS. TS est le <i>timestamp</i> (instant d'acquisition) et E est l'énergie.	156

Figure 91. Diagramme du système fondé sur un émulateur d'impulsions DT5800, utilisé pour diagnostiquer les problèmes d'acquisition avec le numériseur DT5730 et le logiciel CoMPASS.	158
Figure 92. Diagnostic d'enregistrement des données pour 5 min d'acquisition avec l'émulateur d'impulsions selon une loi de Poisson sur les 8 voies d'acquisition du numériseur DT5730, de 150 à 180 kHz par voie.	159
Figure 93. Diagnostic d'enregistrement des données pour 5 min d'acquisition avec l'émulateur d'impulsions selon une loi de Poisson sur les 8 voies d'acquisition du numériseur DT5730, de 190 à 210 kHz par voie.	159
Figure 94. Taux d'enregistrement des données pour des acquisitions de 5 min avec l'émulateur d'impulsions DT5800D sur 8 voies d'acquisition du numériseur DT5730, de 150 kcps à 200 kcps par voie, avec 4 disques SSD montés en RAID0 pour l'écriture des données.	160
Figure 95. Diagnostic d'enregistrement des données pour chacune des voies lors de l'acquisition à 170 kcps par voie présenté en Figure 94.	160
Figure 96. Taux d'enregistrement des données pour une acquisition de 3 min avec l'émulateur d'impulsions DT5800 sur 7 voies du numériseur d'impulsion DT5730, à 220 kcps pour chaque voie.	161

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1. Taux d'émission neutronique et multiplicités par fission spontanée des actinides.	23
Tableau 2. Distribution des multiplicités mesurées des neutrons prompts de fissions spontanées, pour les isotopes pairs du plutonium et pour le californium 252.	24
Tableau 3. Taux d'émission neutroniques par réactions (α, n) en fonction des isotopes émetteurs alpha et de leur forme chimique.	25
Tableau 4. Distribution des multiplicités neutroniques obtenues à partir d'une mesure d'un échantillon de 60 g de PuO ₂ (système d'efficacité de détection $\epsilon = 56\%$) [Ensslin1998].	29
Tableau 5. Comparaison des performances simulées du FNMC (scintillateurs organiques liquides) avec celles du dispositif JCC-31 (compteurs à hélium 3) commercialisé par Mirion Technologies [Chichester2015] [Mirion_JCC31].	38
Tableau 6. Facteurs de mérite de la PSD pour le scintillateur plastique EJ-299-33 et les scintillateurs liquides EJ-309 et EJ-301. Ces scintillateurs cylindriques (\varnothing 5.08 cm x L 5.08 cm) sont équipés de tubes photomultiplicateurs Electron Tubes Limited ETL 9214B [Pozzi2013] ou Hamamatsu H1949-51 [Cester2014]).	40
Tableau 7. Description des deux types de matrices étudiées expérimentalement dans la thèse [Simony2017_b]. ..	43
Tableau 8. Efficacités de détection calculées avec MCNPX-PoliMi pour une source de californium 252 placé au centre des détecteurs ou du fût maquette avec un seuil bas à 100 keVee [Simony2017_b].	43
Tableau 9. Comptages des multiplicités pour une mesure de bruit de fond et des mesures des sources de californium 252 et d'américium-béryllium avec rejet de la diaphonie par paralysie des détecteurs voisins pendant 10 ns et un seuil en énergie de 100 keVee [Simony2017_b].	44
Tableau 10. Comparaison des résultats de simulation pour des sources ponctuelles centrées de césium 137 de 1.24 GBq et de plutonium 240 (100 g, 22 400 fissions par seconde), pour 8 s de mesure dans un dispositif de détection couvrant entièrement le fût de 118 litres, avec différentes épaisseurs de plomb, rejet de la diaphonie par paralysie des détecteurs voisins pendant 10 ns et une matrice bois de densité 0,2 [Simony2017_b].	45
Tableau 11. Comparaison des résultats de simulations pour des sources ponctuelles et centrées de cobalt-60 (10 MBq) et de plutonium-240 (100 grammes, 22 400 fissions par secondes), pour 15 secondes de mesure dans un dispositif de détection couvrant entièrement le fût de 118 litres, avec différentes épaisseurs de plomb, rejet de la diaphonie par paralysie des détecteurs voisins pendant 10 ns et une matrice bois de densité 0,2 [Simony2017_b].	46
Tableau 12. Sources étalons utilisées pour les mesures.	57
Tableau 13. Ratios Compton / Maximum pour les 3 raies gamma considérées [Simony2017] [DeStefano2018]	60
Tableau 14. Nombre d'événements détectés dans les différents ordres de multiplicités (après soustraction du bruit de fond) et taux de singulets, doublets, et triplets pour le bruit de fond et les mesures de 5 min corrigées du bruit de fond, sans application du rejet de la diaphonie à ce stade.	66
Tableau 15. Comptages dans la région d'intérêt sans et avec rejet de la diaphonie par paralysie des détecteurs voisins pendant 10, 30 et 60 ns. Le RSB est celui défini en (5).	70
Tableau 16. Taux de comptage des multiplicités et des singulets, doublets et triplets simulés vs. expérimentaux pour la source de ²⁵² Cf, sans rejet de la diaphonie.	74
Tableau 17. Taux de comptage des multiplicités et des singulets, doublets et triplets simulés vs. expérimentaux pour la source d'AmBe, sans rejet de la diaphonie.	75
Tableau 18. Taux de comptage des multiplicités et des singulets, doublets et triplets simulés vs. expérimentaux pour la source de ⁶⁰ Co, sans rejet de la diaphonie.	75
Tableau 19. Comptage dans la région d'intérêt du signal utile des coïncidences $\gamma n n$ de fission spontanée pour les simulations des 3 sources, avec et sans rejet de diaphonie et selon la durée de paralysie des détecteurs.	80
Tableau 20. Nombre d'événements détectés aux différents ordres de multiplicités et taux de singulets, doublets et triplets pour les mesures de 5 min en présence des 4 sources ²⁵² Cf, AmBe, ⁶⁰ Co et ¹³⁷ Cs, sans rejet de la diaphonie, ni seuillage en énergie, ni soustraction du bruit de fond donné en 2 ^{ème} colonne.	81
Tableau 21. Analyse similaire à celle du Tableau 20 mais limitée aux 90 premières secondes d'acquisition.	83
Tableau 22. Caractéristiques des deux matrices de déchets utilisées pour les mesures.	88
Tableau 23. Caractéristiques des sources de ²⁵² Cf et de la source d'AmBe utilisées pour les études.	89
Tableau 24. Caractéristiques des plaquettes de plutonium utilisées pour l'étude [Brizard2021].	89
Tableau 25. Caractéristiques des sources de rayonnements gamma utilisées pour l'étude.	89
Tableau 26. Comptages des différents ordres de multiplicité et des singulets, doublets et triplets (plus leurs taux de comptage entre parenthèses) issus de la méthode du registre à décalage pour une mesure de bruit de fond pendant 30 min, avec matrice métallique et écran de plomb.	91
Tableau 27. Comptages des différents ordres de multiplicité et des singulets, doublets et triplets (plus leurs taux de comptage entre parenthèses) issus de la méthode du registre à décalage pour une mesure de bruit de fond pendant 30 min, avec matrice métallique et sans écran de plomb.	92
Tableau 28. Comptages des différents ordres de multiplicité et des singulets, doublets et triplets (plus leurs taux de comptage entre parenthèses) issus de la méthode du registre à décalage pour une mesure de bruit de fond pendant 30 minutes, avec matrice organique et écran de plomb.	93
Tableau 29. Variations du bruit de fond entre deux dates de mesure, en présence de la matrice métallique et de l'écran de plomb de 5 cm ou non, sans rejet de la diaphonie.	93
Tableau 30. Efficacités de détection des neutrons d'une source de ²⁵² Cf calculées avec MCNPX-PoliMi.	98

Tableau 31. Efficacités de détection des rayonnements gamma de fission d'une source de ^{252}Cf calculées avec MCNPX-PoliMi.	99
Tableau 32. Efficacité globale de détection des fissions spontanées du ^{252}Cf et du ^{240}Pu	99
Tableau 33. Efficacités de détection des rayonnements gamma prompts de fission d'une source de ^{252}Cf calculées avec MCNPX-PoliMi avec différentes épaisseurs d'écran de plomb devant les détecteurs.	100
Tableau 34. Taux d'émission des raies gamma et X supérieures à 100 keV émises par les 4 plaquettes de plutonium [Laraweb].....	101
Tableau 35. Comparaison expérience calcul pour une source de ^{252}Cf au centre de la matrice métallique ou organique.	102
Tableau 36. Comparaison expérience calcul pour la source AmBe au centre de la matrice métallique ou organique.	102
Tableau 37. Comparaison expérience calcul pour la source de ^{60}Co posée au-dessus de la matrice métallique ou organique.	102
Tableau 38. Comparaison expérience-calcul pour les 4 plaquettes de plutonium « au centre » (voir texte) de la matrice métallique et de la matrice organique.	104
Tableau 39. Correction de la mesure du plutonium avec le bruit de fond mesuré le 25 février 2021, en présence de la matrice métallique et de l'écran de plomb de 5 cm.....	104
Tableau 40. Comptages dans les régions d'intérêts des histogrammes 2D ($10 \text{ ns} \leq \Delta_{2-1} \leq 30 \text{ ns}$ et $10 \text{ ns} \leq \Delta_{2-1} \leq 30 \text{ ns}$) pour les mesures de 5 min de bruit de fond dans les deux matrices, aux différentes dates.....	107
Tableau 41. Comptages dans la ROI des histogrammes 2D ($10 \text{ ns} \leq \Delta_{2-1} \leq 30 \text{ ns}$ et $10 \text{ ns} \leq \Delta_{2-1} \leq 30 \text{ ns}$) pour les mesures et simulations de 5 min avec les sources de ^{252}Cf et d'AmBe, avec écran de plomb.....	108
Tableau 42. Comptages dans la ROI des histogrammes 2D ($10 \text{ ns} \leq \Delta_{2-1} \leq 30 \text{ ns}$ et $10 \text{ ns} \leq \Delta_{2-1} \leq 30 \text{ ns}$) pour les mesures et simulations de 5 min avec sources de ^{60}Co et de ^{137}Cs , avec écran de plomb.....	108
Tableau 43. Coefficients de sensibilité pour la mesure des triplets (méthode des registres à décalage) avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice métallique.....	109
Tableau 44. Coefficients de sensibilité pour la mesure dans la ROI des histogrammes 2D avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice métallique.	110
Tableau 45. Coefficients de sensibilité pour la mesure des triplets (registres à décalage) avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice organique.....	112
Tableau 46. Coefficients de sensibilité pour la mesure dans la ROI des histogrammes 2D avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice organique.....	112
Tableau 47. Coefficients de sensibilité pour la mesure des triplets (registres à décalage) simulés avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice métallique.....	114
Tableau 48. Coefficients de sensibilité simulés pour la mesure dans la ROI des histogrammes 2D avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice métallique.....	114
Tableau 49. Coefficients de sensibilité simulés pour la mesure des triplets (registres à décalage) simulés avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice organique.	115
Tableau 50. Coefficients de sensibilité pour la mesure dans la ROI des histogrammes 2D simulés avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice organique.	116
Tableau 51. Mesure de 10 min du bruit de fond avec la matrice organique et sans écran de plomb.	119
Tableau 52. Taux de singulets, doublets et triplets pour une mesure de 10 min en présence de la source de ^{252}Cf la plus active ($n^{\circ}3$) et des sources parasites d'AmBe, ^{60}Co et ^{137}Cs , obtenus avec la méthode du registre à décalage et les fenêtres (R+A) de 0 à 100 ns et (A) de 1000 à 1100 ns.	119
Tableau 53. Taux de singulets, doublets et triplets pour une mesure de 10 min avec la source de ^{252}Cf la plus active ($n^{\circ}3$) et les sources parasites d'AmBe, ^{60}Co et ^{137}Cs , obtenus avec la méthode du registre à décalage et les fenêtres (R+A) de 10 à 30 ns et (A) de 140 à 160 ns.	119
Tableau 54. Taux de singulets, doublets et triplets pour des mesures de 10 min de la source de ^{252}Cf la plus active ($n^{\circ}3$) et des sources parasites d'AmBe, ^{60}Co et ^{137}Cs , obtenus par la méthode du registre à décalage avec (R+A) de 10 à 30 ns et (A) de 140 à 160 ns, avec rejet de la diaphonie sur 30 ns.....	120
Tableau 55. Comptages obtenus dans les régions d'intérêts des histogrammes 2D pour les différentes configurations de sources mesurées.	122
Tableau 56. Résultats des comptages bruts et corrigés obtenus dans le cadre des configurations testées avec le ^{252}Cf , et selon les différentes stratégies de rejet de diaphonie.	124
Tableau 57. Résultats des comptages nets obtenus dans le cadre des configurations testées avec les 4 plaquettes de plutonium et différentes durées de rejet de diaphonie.	125
Tableau 58. Comptages dans les ROI des histogrammes, pour 30 min de mesure, corrigés par les accidentelles proches ou éloignées, pour différentes sources au centre de la matrice métallique avec le plomb, un ratio alpha de 1,2 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.	133
Tableau 59. Comptages dans les ROI des histogrammes, pour 30 min de mesure, corrigés par les accidentelles proches ou éloignées, pour différentes sources au centre de la matrice métallique avec le plomb, un ratio alpha de 12 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.	133
Tableau 60. Comptages dans les ROI des histogrammes, pour 30 min de mesure, corrigés par les accidentelles proches ou éloignées, pour différentes sources au centre de la matrice métallique avec le plomb, un ratio alpha de 59 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.	133

Tableau 61. Comptages dans les ROI des histogrammes, pour 30 min de mesure, corrigés par les accidentelles proches ou éloignées, pour différentes sources au centre de la matrice métallique avec le plomb, un ratio alpha de 72 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.	134
Tableau 62. Comptages dans les ROI des histogrammes, pour 30 min de mesure, corrigés par les accidentelles proches ou éloignées, pour différentes sources au centre de la matrice organique avec le plomb, un ratio alpha de 1,2 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.	135
Tableau 63. Comptages dans les ROI des histogrammes, pour 30 min de mesure, corrigés par les accidentelles proches ou éloignées, pour différentes sources au centre de la matrice organique avec le plomb, un ratio alpha de 12 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.	135
Tableau 64. Comptages dans les ROI des histogrammes, pour 30 min de mesure, corrigés par les accidentelles proches ou éloignées, pour différentes sources au centre de la matrice organique avec le plomb, un ratio alpha de 59 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.	135
Tableau 65. Comptages dans les ROI des histogrammes, pour 30 min de mesure, corrigés par les accidentelles proches ou éloignées, pour différentes sources au centre de la matrice organique avec le plomb, un ratio alpha de 72 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.	136
Tableau 66. Limites de détection en 30 min de mesure pour les plaquettes de plutonium (exprimées en gramme de ²⁴⁰ Pu ^{éq}) au centre des matrices métallique et organique (rejet de diaphonie sur 30 ns).	137
Tableau 67. Dénombrement des combinaisons de 2 impulsions et de 3 impulsions coïncidentes dans les ordres de multiplicités neutroniques. Les impulsions en rouge symbolisent les déclenchements des fenêtres de coïncidences.	151
Tableau 68. Comparaison expérience calcul pour une source de ²⁵² Cf au centre de la matrice métallique ou organique.	162
Tableau 69. Comparaison expérience calcul pour la source AmBe au centre de la matrice métallique ou organique.	163
Tableau 70. Comparaison expérience calcul pour la source de ⁶⁰ Co posée au-dessus de la matrice métallique ou organique.	164
Tableau 71. Comparaison expérience calcul pour les 4 plaquettes de plutonium « au centre » (voir texte) de la matrice métallique et de la matrice organique.	165
Tableau 72. Correction de la mesure du plutonium avec le bruit de fond mesuré le 24 février 2021, en présence de la matrice métallique et de l'écran de plomb de 5 cm.	165
Tableau 73. Comparaison expérience/calcul pour des combinaisons d'une source de ²⁵² Cf avec les sources d'AmBe et de ⁶⁰ Co, dans le cas de la matrice métallique.	166
Tableau 74. Comparaison expérience/calcul pour des combinaisons d'une source de ²⁵² Cf avec les sources d'AmBe et de ⁶⁰ Co, dans le cas de la matrice organique.	167
Tableau 75. Comptages dans les régions d'intérêts des histogrammes 2D (10 ns ≤ Δ ₂₋₁ ≤ 30 ns et 10 ns ≤ Δ ₂₋₁ ≤ 30 ns) pour les mesures et simulations de 5 min avec sources de ²⁵² Cf et d'AmBe.	167
Tableau 76. Simulation de l'effet de la densité pour une mesure de 5 min avec une source de ²⁵² Cf au centre de la matrice métallique.	168
Tableau 77. Simulation de l'effet de la densité pour une mesure de 5 min avec une source de ²⁵² Cf au centre de la matrice organique.	168
Tableau 78. Simulation de l'effet de la densité du plomb pour une mesure de 2 min avec une source de ¹³⁷ Cs au centre de la matrice métallique.	169
Tableau 79. Simulation de l'effet de la densité du plomb pour une mesure de 2 min avec une source de ²⁵² Cf au centre de la matrice métallique.	169
Tableau 80. Simulation de l'effet du seuil en énergie pour une mesure de 2 min avec une source de ²⁵² Cf au centre de la matrice métallique.	170
Tableau 81. Mesure de 10 min du bruit de fond avec la matrice organique et sans écran de plomb.	171
Tableau 82. Ordres de multiplicités et singulets, doublets et triplets pour une mesure de 10 min en présence de la source de ²⁵² Cf la plus active (n°3) et des sources parasites d'AmBe, ⁶⁰ Co et ¹³⁷ Cs, obtenus avec la méthode du registre à décalage et les fenêtres (R+A) de 0 à 100 ns et (A) de 1000 à 1100 ns.	172
Tableau 83. Ordres de multiplicités et singulets, doublets et triplets pour une mesure de 10 min avec la source de ²⁵² Cf la plus active (n°3) et les sources parasites d'AmBe, ⁶⁰ Co et ¹³⁷ Cs, obtenus avec la méthode du registre à décalage le les fenêtres (R+A) de 10 à 30 ns et (A) de 140 à 160 ns.	173
Tableau 84. Ordres de multiplicités et singulets, doublets et triplets pour des mesures de 10 min de la source de ²⁵² Cf la plus active (n°3) et des sources parasites d'AmBe, ⁶⁰ Co et ¹³⁷ Cs, obtenus par la méthode du registre à décalage avec (R+A) de 10 à 30 ns et (A) de 140 à 160 ns, avec rejet de la diaphonie sur 30 ns.	174
Tableau 85. Nombres de singulets, doublets et triplets mesurés en 30 min avec la méthode du registre à décalage (taux de comptage entre parenthèses) et dans les ROI des histogrammes, pour différentes sources au centre de la matrice métallique, avec le plomb, un ratio alpha de 1,2 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.	175
Tableau 86. Nombres de singulets, doublets et triplets mesurés en 30 min avec la méthode du registre à décalage (taux de comptage entre parenthèses) et dans les ROI des histogrammes, pour différentes sources au centre de la matrice métallique, avec le plomb, un ratio alpha de 12 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.	175
Tableau 87. Nombres de singulets, doublets et triplets mesurés en 30 min avec la méthode du registre à décalage (taux de comptage entre parenthèses) et dans les ROI des histogrammes, pour différentes sources au centre de la matrice métallique, avec le plomb, un ratio alpha de 59 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.	176

Tableau 88. Nombres de singulets, doublets et triplets mesurés en 30 min avec la méthode du registre à décalage (taux de comptage entre parenthèses) et dans les ROI des histogrammes 2D, pour les plaquettes de Pu et différentes sources au centre de la matrice métallique, avec plomb, un ratio alpha de 72 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.	176
Tableau 89. Nombres de singulets, doublets et triplets obtenus avec la méthode du registre à décalage, et comptages obtenus dans les régions d'intérêts des histogrammes pour les différentes configurations de 30 min de mesure. Le ratio alpha est de 1,2 et la diaphonie est rejeté sur des intervalles de 30 ns.	176
Tableau 90. Nombres de singulets, doublets et triplets obtenus avec la méthode du registre à décalage, et comptages obtenus dans les régions d'intérêts des histogrammes pour les différentes configurations de 30 min de mesure. Le ratio alpha est de 12 et la diaphonie est rejeté sur des intervalles de 30 ns.	177
Tableau 91. Nombres de singulets, doublets et triplets obtenus avec la méthode du registre à décalage, et comptages obtenus dans les régions d'intérêts des histogrammes pour les différentes configurations de 30 min de mesure. Le ratio alpha est de 59 et la diaphonie est rejeté sur des intervalles de 30 ns.	177
Tableau 92. Nombres de singulets, doublets et triplets obtenus avec la méthode du registre à décalage, et comptages obtenus dans les régions d'intérêts des histogrammes pour les différentes configurations de 30 min de mesure. Le ratio alpha est de 72 et la diaphonie est rejeté sur des intervalles de 30 ns.	177
Tableau 93. Tableau récapitulatif des écarts relatifs avec la mesure des sources de fissions seules, pour les différentes configurations de sources ensemble, avec rejet de la diaphonie sur 30 ns, pour la matrice métallique.	178
Tableau 94. Tableaux récapitulatifs des résultats ; Ecart relatifs avec les mesures des seules sources de fissions, pour les différentes configurations de sources, et avec rejet de diaphonie sur 30 ns, pour la matrice organique. ..	178
Tableau 95. Distribution de probabilités des multiplicités neutroniques de fissions spontanées des isotopes ^{252}Cf et ^{240}Pu . P(0) est la probabilité qu'aucun neutron ne soit émis, P(1) la probabilité pour 1 neutron, P(2) pour 2 neutrons, etc. [Ensslin1991_11].	179
Tableau 96. Limites de détection (30 minutes de mesure) du ^{252}Cf et du plutonium (toutes deux exprimées en gramme de $^{240}\text{Pu}_{\text{éq}}$) pour une répartition homogène ou au centre des matrices métallique et organique.	180
Tableau 97. Comptages corrigés de la ROI pour des simulations de ^{240}Pu en présence d'AmBe, pour divers ratios alpha et avec un rejet standard de la diaphonie pendant 10 ns.	181
Tableau 98. Comptages corrigés de la ROI pour des simulations de ^{240}Pu en présence d'AmBe, pour divers ratios alpha et avec un rejet standard de la diaphonie pendant 30 ns.	181
Tableau 99. Comptages corrigés de la ROI pour des simulations de ^{240}Pu en présence d'AmBe, pour divers ratios alpha et avec un rejet standard de la diaphonie pendant 60 ns.	181
Tableau 100. Comptages corrigés de la ROI pour des simulations de ^{240}Pu en présence d'AmBe, pour divers ratios alpha et avec un rejet parfait de la diaphonie pendant 10 ns.	182
Tableau 101. Comptages corrigés de la ROI pour des simulations de ^{240}Pu en présence d'AmBe, pour divers ratios alpha et avec un rejet parfait de la diaphonie pendant 30 ns.	182
Tableau 102. Comptages corrigés de la ROI pour des simulations de ^{240}Pu en présence d'AmBe, pour divers ratios alpha et avec un rejet parfait de la diaphonie pendant 60 ns.	182
Tableau 103. Comptages corrigés de la ROI avec la méthode des accidentelles proches pour des simulations de ^{240}Pu en présence d'AmBe, pour divers ratios alpha et avec un rejet standard de la diaphonie pendant 30 ns.	183
Tableau 104. Comptages corrigés de la ROI avec la méthode des accidentelles proches pour des simulations de ^{240}Pu en présence d'AmBe, pour divers ratios alpha et avec un rejet standard de la diaphonie pendant 60 ns.	183
Tableau 105. Comptages corrigés de la ROI par la méthode des accidentelles proches pour des simulations de ^{240}Pu en présence d'AmBe, pour divers ratios alpha, avec un rejet parfait de la diaphonie pendant 30 ns.	183
Tableau 106. Comptages corrigés de la ROI par la méthode des accidentelles proches pour des simulations de ^{240}Pu en présence d'AmBe, pour divers ratios alpha, avec un rejet parfait de la diaphonie pendant 60 ns.	184

INTRODUCTION GENERALE

L'industrie et la recherche nucléaires génèrent des déchets radioactifs dont la dangerosité pour l'homme et pour l'environnement nécessite une gestion rigoureuse afin de les orienter vers les exutoires les plus appropriés (entreposage et stockage en surface, stockage géologique profond, etc.). Une caractérisation précise est nécessaire pour éviter de surclasser des colis proches des critères d'acceptation, car une filière inappropriée se traduit par un surcoût très élevé pour les producteurs de déchets. Cette caractérisation implique diverses techniques de caractérisation, nucléaires ou non, « destructives » (carottage, découpe, prélèvement d'échantillons pour pratiquer des analyses radiochimiques) ou « non-destructives » (conservation de l'intégrité physique du colis et du conditionnement des déchets). Les principaux objectifs sont :

- de déterminer les propriétés physiques et chimiques des conteneurs (perméabilité, présence de fissures, confinement des radioéléments, résistance mécanique ou à la corrosion, etc.) et des déchets avec, le cas échéant, leur matrice d'enrobage (taux de remplissage, hétérogénéités, densité, qualité de l'enrobage, taux de vide, présence de cavités, etc.). Par exemple, la densité apparente peut être estimée par des mesures simples de transmission gamma tandis qu'une tomographie 3D peut être obtenue par imagerie avec des rayonnements X ou gamma. Des informations sur la composition chimique peuvent par ailleurs être obtenues par imagerie à plusieurs énergies ou par activation neutronique ;
- de déterminer le contenu radiologique des déchets (radionucléides émetteurs, composition isotopique des matières nucléaires, activités), principalement par spectrométrie gamma et par des mesures neutroniques passives ou actives ;
- de quantifier la masse de matière nucléaire (uranium, plutonium) et en particulier la masse fissile (^{235}U , $^{239+241}\text{Pu}$), à nouveau par spectrométrie gamma et mesure neutronique, ces mesures étant souvent complémentaires (la composition isotopique mesurée en spectrométrie gamma servant notamment à interpréter les comptages neutroniques).

La quantification du plutonium dans les déchets technologiques issus des activités de retraitement des combustibles usés, de fabrication des combustibles MOX (*Mixed Oxyde*) ou des laboratoires de recherche est un enjeu majeur de la gestion des déchets radioactifs. En France, l'Agence Nationale de gestion des Déchets RADioactifs (ANDRA) est notamment en charge de contrôler la conformité des colis par rapport aux critères d'acceptation, notamment sur le contenu radiologique et la masse fissile, dans les sites de stockage. Elle s'assure des déclarations faites par les producteurs de déchets afin de garantir la sûreté de ces sites, notamment en termes de criticité (masse fissile) et de relâchements à long terme des radioéléments dans l'environnement (activité des radioéléments à vie longue, notamment les émetteurs alpha).

La mesure neutronique passive en coïncidence est une méthode couramment employée pour identifier les neutrons corrélés émis par fission spontanée, qui sont des signatures caractéristiques de la présence de matière nucléaire. Elle permet notamment de les différencier des neutrons émis par les réactions (α, n), dont le taux d'émission peut être très intense et qui n'est généralement pas proportionnel à la masse de matière nucléaire (par exemple en présence d' ^{241}Am). Les mesures sont conventionnellement assurées par les dispositifs fondés sur les compteurs proportionnels à hélium 3, mais la raréfaction à l'échelle mondiale de ce gaz et les besoins croissants pour les contrôles de non-prolifération et aux frontières (notamment aux USA) ont entraîné une inflation du prix de vente. D'importantes recherches d'alternatives sont menées dans le monde depuis une quinzaine d'années sur de nouvelles technologies de détecteurs et de dispositifs de mesure de performances équivalentes à des prix accessibles. Dans ce cadre, deux grandes familles de détecteurs sont étudiées par la communauté scientifique internationale :

- les compteurs proportionnels gazeux, de la même famille que les compteurs à hélium 3, à dépôts de bore ou de lithium, à remplissage au gaz de BF_3 , ou mixtes à dépôt de bore et remplissage d' ^3He . Ils sont sensibles aux neutrons thermiques, préalablement ralentis (par exemple avec du polyéthylène) pour favoriser leur capture ;
- les scintillateurs organiques (plastiques, liquides, cristaux ou verres) capables de détecter les neutrons rapides grâce aux diffusions inélastiques sur les noyaux d'hydrogène (protons de recul).

Le scintillateur plastique au polyvinyle toluène (PVT) non dopé est bon marché et présente une efficacité intrinsèque de détection des neutrons similaires à celui de blocs de détection à compteurs hélium 3 entourés de polyéthylène, de l'ordre de 70 %. Ils sont façonnables en grandes dimensions, ce qui permet d'optimiser la couverture géométrique du colis de déchet radioactifs tout en limitant le nombre de voies électroniques. Un scintillateur au plastique PVT de 10 litres (10 cm x 10 cm x 100 cm) tel que ceux utilisés dans cette thèse coûte environ 2500 €, photomultiplicateur compris. Pour obtenir une efficacité de détection similaire, il faut au moins 3 compteurs à ^3He de 5000 € pièce. Un autre avantage des scintillateurs est leur rapidité de réponse, avec des impulsions dont le front de montée est inférieur à une dizaine de nanosecondes et la durée moyenne est inférieure à 100 ns. De plus, le fait de détecter des neutrons rapides sans les thermaliser permet d'utiliser des fenêtres de coïncidence pour les particules corrélés de fission de quelques dizaines de nanosecondes (contre quelques dizaines de microsecondes

avec des compteurs à ^3He) et ainsi de limiter le taux de coïncidences accidentelles). Ces scintillateurs présentent cependant l'inconvénient, par rapport aux compteurs à ^3He , d'être très sensibles aux rayonnements gamma susceptibles d'apporter un signal parasite conséquent dans les données mesurées, ainsi qu'au phénomène de diaphonie de diffusion neutronique et gamma d'une même particule qui peut ainsi générer des impulsions dans plusieurs détecteurs, ce qui génère des coïncidences parasites pouvant mener à surestimer le signal utile du plutonium.

Le Laboratoire de Mesures Nucléaires du CEA Cadarache étudie la possibilité d'implémenter ces scintillateurs PVT dans des systèmes de mesures neutroniques depuis plusieurs années, avec notamment les thèses de Clément Deyglun (2011-2014, toutes premières études par simulation numérique en marge d'un travail principal sur l'interrogation neutronique pour la détection des matières nucléaires, dans le domaine de la sécurité) et Benoit Simony (2014-2017, premières études expérimentales et par simulation sur des colis de déchets technologiques) dans lesquelles des nouveaux traitements de données pour le rejet de la diaphonie et l'exploitation des ordres élevés des multiplicités ont été testés. La présente thèse s'inscrit dans la continuité de ces travaux en proposant de nouveaux outils de traitement des données basés sur le comptage des multiplicités mais aussi sur une discrimination temporelle des événements utiles de fission et des événements parasites, ainsi que le développement d'une maquette à l'échelle 1 d'un dispositif de mesure pour fûts de déchets technologiques de 100 ou 200 litres.

Le manuscrit se décline en trois parties. Le premier chapitre présente l'état de l'art de la mesure neutronique, avec le contexte technico-économique des recherches d'alternatives aux compteurs à hélium 3, les fondamentaux de la mesure neutronique passive des coïncidences et les résultats récents obtenus au sein de la communauté scientifique internationale sur les technologies de remplacement. En particulier, les derniers travaux sur les scintillateurs plastiques sont étudiés plus en détail afin de positionner ces travaux de thèse et l'approche originale proposée.

Le deuxième chapitre étudie ces nouveaux traitements de données et leur implémentation au sein du code TraCNAR (*Tracking Coincidences of Neutrons and gamma-rays with ROOT*). Ces traitements innovants, qui combinent l'exploitation du temps de vol des particules avec l'analyse classique des multiplicités par la méthode des registres à décalage et le formalisme mathématique de Boehnel, ont fait l'objet d'un dépôt de brevet au cours de la thèse. Les premiers essais de la méthode brevetée sont réalisés dans un dispositif simplifié avec 8 scintillateurs PVT, un numériseur multivoies DT5730 de la société CAEN S.p.A (Italie) et des sources radioactives de ^{252}Cf , AmBe, ^{60}Co et ^{137}Cs nues (sans colis ni matrices de déchets). Des simulations numériques avec MCNPX-PoliMi sont réalisées, d'une part pour mieux comprendre et valider les résultats expérimentaux, d'autre part comme outil d'optimisation de la méthode d'analyse des données (rejet de la diaphonie, sélection des coïncidences utiles).

Le troisième chapitre porte sur les résultats expérimentaux obtenus avec un système plus complet à 16 scintillateurs PVT et l'électronique d'acquisition FASTER du CRNS (LPC de Caen), qui constitue quasiment une maquette à l'échelle 1 d'un poste de mesure pour fûts de 100 ou 200 litres. Les sources radioactives précédentes ou des échantillons de plutonium sont introduits dans des canaux d'instrumentation d'un colis maquette rempli avec une matrice métallique ou organique de déchets inactifs, et les détecteurs sont protégés par un écran de plomb contre les rayonnements gamma intenses accompagnant les désintégrations α et β du plutonium. Une caractérisation du bruit de fond aux différentes périodes d'essais est d'abord réalisée, notamment pour tenter d'identifier l'origine d'événements de multiplicité élevée (rayonnement cosmique) et leurs fluctuations. Des études d'optimisation de la méthode, à la fois expérimentales et par simulation numérique, sont ensuite réalisées pour les critères de sélection temporelle des événements utiles, la correction des coïncidences accidentelles, le rejet de la diaphonie de diffusion neutronique et gamma, ceci en fonction des deux paramètres d'influence principaux que sont le ratio alpha (rapport des émissions neutroniques parasites par réactions (α, n) et utiles par fission spontanée) et le taux de comptage total (avec des sources parasites gamma notamment). Le signal utile des coïncidences de fission spontanée issu de sources de ^{252}Cf ou de plaquettes de plutonium est ainsi perturbé par l'ajout des diverses sources parasites d'AmBe, ^{60}Co et ^{137}Cs . Par ailleurs, les effets de matrice et de localisation de la matière nucléaire au sein du colis maquette sont étudiés en déplaçant des sources ponctuelles de ^{252}Cf dans les matrices de fer et de bois, et une estimation des limites de détection du plutonium au centre de ces matrices est réalisée.

Chapitre 1 – Etat de l’art sur les mesures neutroniques passives et positionnement de la thèse

1. INTRODUCTION

1.1 LA CARACTERISATION DES DECHETS RADIOACTIFS

Les applications médicales, industrielles et de recherche dans le domaine nucléaire génèrent des déchets radioactifs dont la dangerosité pour l’homme et son environnement impose une caractérisation précise. Ce chapitre d’état de l’art balaye les différentes méthodes de caractérisation non destructive de ces déchets, et se concentre plus précisément sur la mesure neutronique passive pour la caractérisation du plutonium. L’inflation du prix de l’hélium 3, gaz actif dans les dispositifs de référence, induit un effort international de recherche de technologies alternatives. Les recherches sur les technologies ayant le potentiel réaliser de telles mesures, et notamment de récents travaux sur les scintillateurs plastiques en PVT, sont présentées.

A l’international, une convention commune est établie par l’AIEA (Agence Internationale de l’Energie Atomique) pour régir la sûreté nucléaire ainsi que la gestion des déchets radioactifs et du combustible [IAEA2006]. En France, cette gestion est assurée par l’ANDRA (Agence Nationale pour la gestion des Déchets RAdioactifs), en lien avec les producteurs de déchets radioactifs tels que les acteurs majeurs du secteur nucléaire que sont EdF, Orano et le CEA [ANDRA2019]. Certaines filières de gestion sont beaucoup plus onéreuses que d’autres et il est donc important de réaliser des caractérisations précises pour ne pas « surclasser » certains déchets [Simony2017_b] [Perot2018].

La détermination précise de la masse de matière fissile, dont celle du plutonium, dans les fûts de déchets est aussi cruciale du point de vue de la sûreté-criticité, pour s’assurer qu’aucune concentration incontrôlée à chacune de ces étapes ne génère un incident de criticité (réaction en chaîne par fissions induites successives). Le plutonium présent dans certains déchets radioactifs est un radioélément artificiel généré lors du fonctionnement des réacteurs nucléaires, c’est-à-dire lors des captures neutroniques par le combustible à l’uranium et les désintégrations radioactives successives qui en découlent [ANDRA2019] [Orano]. Le plutonium est extrait des combustibles usés à l’usine de retraitement d’Orano La Hague, où sont récupérées 96 % de matières valorisables avec aussi l’uranium de retraitement. Le plutonium ainsi extrait sert à la fabrication des combustibles mixtes uranium-plutonium (MOX) à l’usine de MELOX (Orano) et anciennement à l’atelier de fabrication de combustible au plutonium de Cadarache (CEA). L’assainissement et le démantèlement de certaines des installations nucléaires impliquées dans ces processus, ainsi que la reprise des déchets anciens, génèrent également des colis de déchets technologiques contaminés au plutonium [Jallu2012]. Les activités de recherche sur les combustibles, les filières de réacteurs, le retraitement et le conditionnement des déchets sont menées principalement au CEA dans les centres de Saclay, Fontenay-aux-Roses, Marcoule et Cadarache.

Les principales méthodes de caractérisation des déchets radioactifs par des mesures nucléaires non destructives sont décrites dans le paragraphe suivant.

1.2 MESURES PASSIVES ET MESURES ACTIVES

Les mesures non-destructives passives consistent à mesurer les rayonnements spontanément émis par l’objet à caractériser. La technique la plus commune est la spectrométrie gamma car elle est très riche d’informations, peu coûteuse et il est aisé de la mettre en œuvre [DEN2019]. Elle consiste à classer les rayonnements X et gamma en fonction de l’énergie déposée dans le détecteur afin de tracer un histogramme appelé spectre gamma. Cette méthode permet d’identifier les radionucléides grâce à leurs raies X et gamma d’émission caractéristiques. Le calcul des aires nettes de ces pics permet en outre de déterminer l’activité des radionucléides.

Dans le cas des mesures de matières nucléaires par spectrométrie gamma, le signal utile recherché (raies gamma d’énergies inférieures à 800 keV) est cependant parfois masqué par celui des émetteurs gamma plus intenses tels que des produits de fissions (ex : ^{137}Cs) ou des produits d’activation (ex : ^{60}Co). Par ailleurs, les matières nucléaires peuvent se trouver en dépôts sur des matériaux métalliques qui atténuent fortement les rayonnements gamma d’intérêt. Pour ces raisons, il est souvent utile de compléter la spectrométrie gamma par des mesures neutroniques passives pour la quantification de la matière nucléaire, qui sont moins impactées par les matériaux de forte densité et de numéro atomique élevé. La mesure neutronique passive donne des informations sur la quantité d’actinides présents dans l’objet mesuré et elle est souvent utilisée pour la quantification du plutonium dans les fûts de déchets.

Elle est cependant très sensible à la présence de noyaux légers tels que l’hydrogène, qui présentent un fort pouvoir de thermalisation pouvant rendre les neutrons indétectables (détecteurs à neutrons rapides) ou très sensibles aux absorbants comme l’hydrogène, le bore, le chlore, le fer et les alliages d’acier inoxydable, le cadmium, etc. (détecteurs à neutrons thermiques) [DEN2019]. Notons qu’à l’inverse, la spectrométrie gamma est moins sensible

aux matériaux peu denses à noyaux légers (plastiques, papier, mouchoirs, coton, vêtements, etc.), ce qui rend ces deux mesures très complémentaires dans certains cas.

En cas d'émissions spontanées insuffisantes, d'émissions parasites trop intenses et masquant le signal, ou bien lorsque l'atténuation des rayonnements gamma et des neutrons est trop importante (colis de déchets denses et de grands volumes), les méthodes passives présentent leurs limites. Dans ces cas plus extrêmes, il est important d'utiliser des méthodes dites « actives » faisant appels à des sources de rayonnements extérieures à l'objet mesuré. L'imagerie photonique par transmission (avec des rayonnements gamma ou des photons de haute énergie produits par Bremsstrahlung avec un accélérateur linéaire d'électrons) permet ainsi, en premier lieu, d'obtenir des informations sur la structure interne des colis (par radiographie et tomодensitométrie) et de réduire les incertitudes des autres mesures liées à l'atténuation des rayonnements dans les matériaux du déchet, de sa matrice d'enrobage éventuelle et du colis. L'interrogation neutronique active vise quant à elle à mesurer les neutrons prompts et retardés des fissions induites sur la matière nucléaire par une source neutronique externe. Elle peut s'avérer nécessaire pour la détection de l'uranium qui n'émet généralement que peu de neutrons de manière spontanée [Chichester2008] [Jordan2008], ou bien pour la mesure du plutonium lorsque d'autres émetteurs parasites par fissions spontanées sont présents (par exemple, le curium) [DEN2019]. L'interrogation photonique active cherche à mesurer les rayonnements neutroniques et gamma retardés des produits de photofissions, c'est-à-dire des produits des fissions induites par des photons de haute énergie, au-dessus du seuil de photofission situé vers 6 MeV [DEN2019]. Ces méthodes actives permettent d'obtenir meilleures statistiques de comptage, mais sont souvent plus impactées par les effets de matrice (atténuation par les matériaux) et de localisation (du contaminant) que ne le sont les méthodes passives (effets combinés sur le flux de rayonnements interrogateurs et sur les rayonnements induits à détecter). Elles sont aussi plus complexes à mettre en œuvre et plus coûteuses. Lorsque les conditions le permettent, les méthodes passives de caractérisation par spectrométrie gamma ou par mesure neutronique sont privilégiées.

Avant d'aborder en détail les différentes méthodes de mesure neutronique passive, dont la mesure des coïncidences qui est au cœur de cette thèse, nous abordons dans le paragraphe suivant l'élément de contexte technico-économique majeur dans lequel elle s'inscrit.

1.3 LA PENURIE MONDIALE EN GAZ HELIUM 3

La détection des neutrons est un enjeu important pour la sécurité des territoires, ainsi que pour les contrôles de non-prolifération de la matière nucléaire et la caractérisation des déchets radioactifs. Les matières nucléaires telles que l'uranium et le plutonium émettent par fissions spontanées ou induites de grandes quantités de neutrons corrélés qui constituent une signature de la présence de ces matériaux [Kouzes2009].

Actuellement, les systèmes de mesure pour les détecter sont principalement fondés sur les compteurs proportionnels à hélium 3, gaz inerte présentant une grande section efficace d'absorption des neutrons thermiques par réaction ${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$ de 5330 barns [Simpson2011]. Ces compteurs ont en outre une faible sensibilité aux rayonnements gamma jusqu'à des débits de doses de l'ordre de 0.1 Gy/h [Crane1991] grâce à la faible densité électronique du gaz, même aux pressions d'utilisation les plus élevées, parfois jusqu'à 10 bar (10^6 Pa) [Knoll1989].

L'hélium 3 est un gaz très rare à l'état naturel sur terre et la quasi-totalité de l'hélium 3 produit provient de la décroissance radioactive du tritium (${}^3\text{H}$) utilisé dans le cadre des programmes d'armement nucléaire, principalement des Etats-Unis et de la Russie [Kouzes2009]. Le traité de non-prolifération (TNP) [IAEA1970] et la réduction des stocks d'armes ont réduit la quantité de tritium et par conséquent le réapprovisionnement en hélium 3. De plus, les attentats du 11 septembre 2001 ont engendré une augmentation de la demande pour le renforcement de la sécurité intérieure face à la menace terroriste nucléaire, avec un accroissement important du nombre de systèmes de détection neutronique aux frontières [Shea2010]. Ceci a entraîné une inflation du prix de l'hélium 3, qui est passé de moins de cents dollars dans les années 1990 à plusieurs milliers de dollars par litre actuellement [Kouzes2009]. En 2010, il était estimé que la demande mondiale en hélium 3 avoisinait les 65 000 litres/an, tandis que l'approvisionnement ne se situait qu'à 15 000 litres/an [Kouzes2010].

Face à cette situation de crise, plusieurs axes de recherche ont été engagés, d'une part en ce qui concerne la production du tritium et d'extraction de l'hélium 3 :

- avec les réacteurs nucléaires à eau lourde, dans lesquels les noyaux de deutérium se convertissent en tritium par absorption d'un neutron. Par exemple, les réacteurs CANDU (*Canada Deuterium Uranium*) dont le tritium est fréquemment évacué puis stocké pour des raisons de radioprotection, pourraient fournir une quantité importante d'hélium 3 par décroissance radioactive. Cette alternative nécessiterait cependant la mise en place de dispositifs coûteux pour l'extraction [Kouzes2010] [Shea2010];
- avec des accélérateurs de particules sur des cibles de lithium, mais la production d'hélium 3 serait encore plus coûteuse que celle issue des réacteurs nucléaires [Shea2010];
- via l'hélium 3 présent dans les réserves naturelles géologiques ou dans l'atmosphère, mais de même, ces perspectives sont à nuancer avec les forts investissements financiers à engager [Shea2010].

De plus, la recherche d'une augmentation de la production de tritium peut apparaître comme une volonté de prolifération de l'armement nucléaire et donc une violation du TNP [Shea2010]. C'est pourquoi des technologies de détection alternatives pour remplacer les compteurs à hélium 3 sont étudiées, tels que les compteurs gazeux à dépôts de bore, les scintillateurs inorganiques et les scintillateurs organiques, principalement pour les applications liées à la sécurité et au contrôle des matières.

Dans un premier temps, des rappels sur les fondements théoriques de la mesure neutronique passive ainsi que les critères de performance d'un système de mesure sont proposés dans le §2 de ce chapitre. Puis, les résultats des recherches menées sur les systèmes et procédés alternatifs de détection sont discutés dans le §3. Enfin, le §4 concerne les travaux antérieurs et précurseurs de la thèse, qui permettent de discuter du positionnement de cette dernière par rapport à l'état de l'art, dans le §5.

2. LES MESURES NEUTRONIQUES DES DECHETS RADIOACTIFS

2.1 COMPTAGE NEUTRONIQUE TOTAL OU DES COÏNCIDENCES AVEC DES COMPTEURS A HELIUM 3

2.1.1 Origine des neutrons

Les mesures neutroniques passives des colis de déchets radioactifs cherchent à détecter les neutrons issus des désintégrations des noyaux lourds, qui s'effectuent selon deux voies principales, la désintégration alpha et la fission spontanée.

- Chaque fission spontanée émet en moyenne 2 à 4 neutrons corrélés temporellement, selon l'actinide considéré. Les taux d'émission sont particulièrement intenses pour les isotopes du curium (^{242}Cm et ^{244}Cm) et pour les isotopes pairs du plutonium (^{238}Pu , ^{240}Pu et ^{242}Pu), voir Tableau 1 [Ensslin1991_11].

Tableau 1. Taux d'émission neutronique et multiplicités par fission spontanée des actinides.

Isotope	Période radioactive totale (années)	Taux d'émission neutronique spécifique par fission spontanée ($\text{s}^{-1} \cdot \text{g}^{-1}$)	Multiplicité par fission spontanée $\bar{\nu}$ (neutrons par fission)
^{232}Th	$1,41 \cdot 10^{10}$	$> 6 \cdot 10^{-8}$	2,14
^{232}U	71,7	1,3	1,71
^{233}U	$1,59 \cdot 10^5$	$8,6 \cdot 10^{-4}$	1,76
^{234}U	$2,45 \cdot 10^5$	$5,02 \cdot 10^{-3}$	1,81
^{235}U	$7,04 \cdot 10^8$	$2,99 \cdot 10^{-4}$	1,86
^{236}U	$2,34 \cdot 10^7$	$5,49 \cdot 10^{-3}$	1,91
^{238}U	$4,47 \cdot 10^9$	$1,36 \cdot 10^{-2}$	2,01
^{237}Np	$2,14 \cdot 10^6$	$1,14 \cdot 10^{-2}$	2,05
^{238}Pu	87,74	$2,59 \cdot 10^3$	2,21
^{239}Pu	$2,41 \cdot 10^4$	$2,18 \cdot 10^{-2}$	2,16
^{240}Pu	$6,56 \cdot 10^3$	$1,02 \cdot 10^3$	2,16
^{241}Pu	14,35	$5 \cdot 10^{-2}$	2,25
^{242}Pu	$3,76 \cdot 10^5$	$1,72 \cdot 10^{-3}$	2,15
^{241}Am	433,6	1,18	3,22
^{242}Cm	$4,46 \cdot 10^{-1}$	$2,10 \cdot 10^7$	2,54
^{244}Cm	18,1	$1,08 \cdot 10^7$	2,72
^{249}Bk	$8,76 \cdot 10^{-1}$	$1,0 \cdot 10^5$	3,40
^{252}Cf	2,646	$2,34 \cdot 10^{12}$	3,757

Les distributions de probabilités des multiplicités neutroniques pour les isotopes pairs du plutonium et le californium 252 sont données dans les Tableau 2 et la distribution en énergie des neutrons de fissions spontanées émis par le californium 252 est illustrée en Figure 1 [Ensslin1991_11] :

Tableau 2. Distribution des multiplicités mesurées des neutrons prompts de fissions spontanées, pour les isotopes pairs du plutonium et pour le californium 252.

Distribution de probabilité P(v)	²³⁸ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴² Pu	²⁵² Cf
P(0)	0.054	0.066	0.068	0.002
P(1)	0.205	0.232	0.230	0.026
P(2)	0.380	0.329	0.334	0.127
P(3)	0.225	0.251	0.247	0.273
P(4)	0.108	0.102	0.099	0.304
P(5)	0.028	0.018	0.018	0.185
P(6)	-	0.002	0.003	0.066
P(7)	-	-	-	0.015
P(8)	-	-	-	-

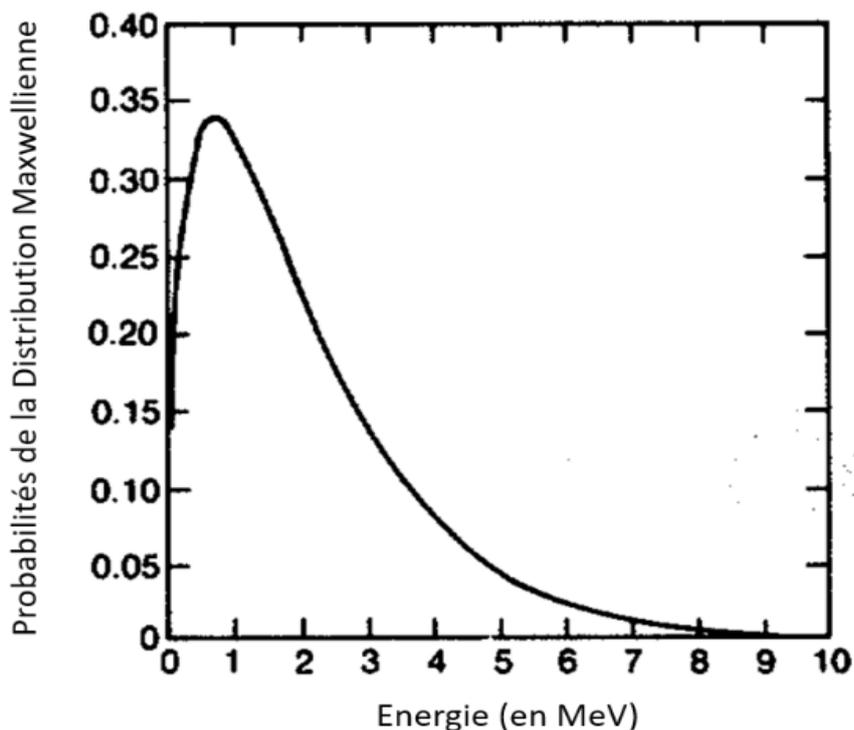


Figure 1. Spectre de Maxwell des neutrons émis par une source de californium 252 [Ensslin1991_11].

- Certains isotopes du plutonium et l'américium 241 présentent une émission alpha très intense. Dans le retraitement des combustibles nucléaires et la fabrication de combustible MOX, le plutonium se présente principalement sous deux formes chimiques, le PuO₂ et le PuF₄, dans lesquelles les éléments légers oxygène ou fluor sont à portée immédiate des particules alpha émises, ce qui génère l'émission de neutrons par réactions (α,n). Les taux d'émission spécifiques alpha et neutroniques par réactions (α,n) propres à ces deux formes chimiques sont donnés dans le Tableau 3 [Ensslin1991_11] :

Tableau 3. Taux d'émission neutroniques par réactions (α,n) en fonction des isotopes émetteurs alpha et de leur forme chimique.

Isotope	Période radioactive de la décroissance α (années)	Taux spécifique d'émission α ($\alpha / s^{-1}.g^{-1}$)	Energie moyenne des particules α (MeV)	Taux d'émission neutronique spécifique par réaction (α,n) (neutrons / $s^{-1}.g^{-1}$)	
				Forme oxyde (e.g. PuO ₂)	Forme fluorée (e.g. PuF ₄)
²³² Th	1,41.10 ¹⁰	4,1.10 ³	4,00	2,2.10 ⁻⁵	-
²³² U	71,7	8,0.10 ¹¹	5,30	1,49.10 ⁴	2,6.10 ⁶
²³³ U	1,59.10 ⁵	3,5.10 ⁸	4,82	4,8	7,0.10 ²
²³⁴ U	2,45.10 ⁵	2,3.10 ⁸	4,76	3,0	5,8.10 ²
²³⁵ U	7,04.10 ⁸	7,9.10 ⁴	4,40	7,1.10 ⁻⁴	0,08
²³⁶ U	2,34.10 ⁷	2,3.10 ⁶	4,48	2,4.10 ⁻²	2,9
²³⁸ U	4,47.10 ⁹	1,2.10 ⁴	4,19	8,3.10 ⁻⁵	0,028
²³⁷ Np	2,14.10 ⁶	2,6.10 ⁷	4,77	3,4.10 ⁻¹	-
²³⁸ Pu	87,74	6,4.10 ¹¹	5,49	1,34.10 ⁴	2,2.10 ⁶
²³⁹ Pu	2,41.10 ⁴	2,3.10 ⁹	5,15	3,81.10 ¹	5,6.10 ³
²⁴⁰ Pu	6,56.10 ³	8,4.10 ⁹	5,15	1,41.10 ²	2,1.10 ⁴
²⁴¹ Pu	5,90.10 ⁵	9,4.10 ⁷	4,89	1,3	1,7.10 ²
²⁴² Pu	3,76.10 ⁵	1,4.10 ⁸	4,90	2,0	2,7.10 ²
²⁴¹ Am	433,6	1,3.10 ¹¹	5,48	2,69.10 ³	-
²⁴² Cm	0,447	1,2.10 ¹⁴	6,10	3,76.10 ⁶	-
²⁴⁴ Cm	18,1	3,0.10 ¹²	5,80	7,73.10 ⁴	-
²⁴⁹ Bk	6,1.10 ⁴	8,8.10 ⁸	5,40	1,8.10 ¹	-
²⁵² Cf	2,731	1,9.10 ¹³	6,11	6,0.10 ⁵	-

On notera aussi que quand les émetteurs alpha sont en contact intime avec des noyaux légers des déchets technologiques sur lesquels ils sont déposés, comme des médias filtrants par exemple, ils peuvent également induire des neutrons par réactions (α,n). C'est notamment le cas avec le bore, le magnésium ou encore le sodium entrant dans la composition de ce type de matériaux support [Bottau2020_a] :

- D'autres réactions secondaires, telles que les diffusions inélastiques (n,n'), ou des réactions de multiplication du type ($n,2n$) et les fissions induites, peuvent également se produire au sein d'un fût de déchets. Les réactions ($n,2n$), qui présentent un seuil relativement élevé pour la plupart des noyaux cibles (> 7.5 MeV), sont surtout présentes dans le cadre des mesures actives avec générateur de neutrons de 14 MeV produits par réaction de fusion Deutérium-Tritium (DT) [Ensslin1991_11]. Dans le cadre des mesures passives, l'effet « multiplicateur » est donc majoritairement dû aux neutrons qui induisent des fissions dans la matière nucléaire ;
- Des neutrons de bruit de fond dus à des rayonnements externes aux colis peuvent aussi être détectés, comme ceux issus de matières radioactives ou autres colis de déchets entreposés ou en transit à proximité, ou ceux dus au rayonnement cosmique naturel pouvant produire un bruit de fond neutronique significatif sur les matériaux métalliques (aluminium, fer, plomb...) du dispositif de mesure et de son environnement immédiat. Il convient alors, selon le niveau et les fluctuations du bruit de fond environnant, de le mesurer juste avant ou après la caractérisation du colis de déchets afin de le soustraire, ou périodiquement mais moins fréquemment si son influence sur l'incertitude de mesure est limitée [Stewart1991].

2.1.2 Comptage neutronique total

La mesure neutronique la plus simple consiste à compter la totalité des neutrons émis par l'objet à caractériser, sans distinction d'origine. Le taux de comptage net mesuré, aussi appelé taux de singulets, est donné par l'équation (1) suivante [Stewart1991] :

$$S = \varepsilon M(n_{(\alpha,n)} + n_{f,s}) \quad (1)$$

où :

- ε est l'efficacité de détection du système, prenant en compte l'absorption des neutrons dans les matériaux du déchet (effets de matrice) et l'enveloppe du colis, la couverture géométrique du système de détection (efficacité de détection géométrique) et l'efficacité intrinsèque des détecteurs (ou blocs de détection, incluant les matériaux thermalisants autour), i.e. le nombre de coups par neutron y entrant. Par exemple, pour des compteurs à hélium 3, l'efficacité intrinsèque pour les neutrons thermiques est de 77 % à une pressurisation de 4 bar (4.10⁵ Pa) [Crane1991] et l'efficacité totale en cellule vide (sans colis) peut atteindre 50 % pour les systèmes avec un très grand nombre de compteurs et une thermalisation en polyéthylène ;

- M est le facteur multiplicatif (sans dimension) dû aux fissions induites comme évoqué dans le paragraphe précédent, qui en fait inclut aussi une part d'auto-absorption des neutrons dans la matière nucléaire ;
- $n_{(\alpha,n)}$ est le nombre de neutrons émis par seconde par réactions (α,n) (en neutrons.s⁻¹) ;
- $n_{(f,s)}$ est le nombre de neutrons émis par seconde par fissions spontanées (en neutrons.s⁻¹).

Il est possible d'associer le comptage total mesuré à la seule contribution neutronique des fissions spontanées grâce à la définition du « ratio alpha » entre $n_{(\alpha,n)}$ et n_{fs} [Ensslin1991_16] :

$$n_{(\alpha,n)} = \alpha n_{fs} \quad (2)$$

Il est alors possible de réécrire l'équation (1) en y injectant l'équation (2) :

$$S = \varepsilon M(\alpha + 1) n_{fs} \quad (3)$$

Le terme n_{fs} s'exprime aussi comme la somme des contributions de chaque d'isotope émetteur selon l'équation suivante :

$$n_{fs} = \sum_j m_j N_j N_{j(f,s)} \nu_j \quad (4)$$

Où :

- m_j est la masse de l'isotope « j » considéré (en g),
- $N_{j(f,s)}$ est le taux de fission spontanée spécifique de l'isotope « i » considéré (en s⁻¹.g⁻¹),
- ν_j est le nombre moyen de neutrons par fission spontanée de l'isotope « j ».

Dans le cas de la mesure du plutonium, il est commun de rapporter les contributions des différents isotopes au seul plutonium 240, qui est souvent l'émetteur principal de neutrons de fissions spontanées [Ensslin1991_11]. La masse dite « équivalente ²⁴⁰Pu » représente alors la masse de plutonium 240 qui serait responsable du même taux d'émission de neutrons par fission spontanée que l'ensemble des isotopes émetteurs présents dans l'objet mesuré. Grâce à ce concept, qui permet notamment de comparer les performances de systèmes de mesure s'adressant à des compositions isotopiques diverses, il est possible de simplifier l'équation (4) de la manière suivante :

$$n_{fs} = m_{240Pu}^{eq} N_{240Pu} \nu_{240Pu} = \sum_j m_j N_j N_{j(f,s)} \nu_j \quad (5)$$

Ce qui permet de réécrire l'équation (3) de la manière suivante :

$$S = \varepsilon M(\alpha + 1) m_{240Pu}^{eq} N_{240Pu} \nu_{240Pu} \quad (6)$$

$N_{240Pu} = 472 \text{ s}^{-1}.\text{g}^{-1}$ et $\nu_{240Pu} = 2.156$ neutrons par fission spontanée sont des données nucléaires connues [Ensslin1991_16]. Si l'effet de multiplication et l'émission (α,n) sont négligeables ($M = 1$ et $\alpha = 0$) ou bien connus, le comptage total mesuré peut donc être relié à la masse équivalente de plutonium 240. Par suite, si l'isotopie du plutonium est connue et à condition qu'il n'y ait pas d'autres émetteurs de neutrons par fission spontanée comme le curium dans l'objet mesuré, il est possible de déduire la masse totale du plutonium en fonction de la masse équivalente de plutonium 240.

Dans le cas des déchets radioactifs, les masses de plutonium sont en général insuffisantes (quelques grammes) pour entraîner un effet de multiplication significatif par fissions induites ($M \approx 1$). Cependant, le ratio alpha peut atteindre plus souvent des valeurs élevées, sur une gamme de 1 à 2 décades [Ensslin91_11] [Porcher2013]. La détermination de sa valeur nécessite de connaître parfaitement la forme chimique du contaminant dans le fût de déchet (§2.1.1) ainsi que l'isotopie du plutonium, sous peine de mal estimer la masse de plutonium [Stewart1991] [Porcher2013]. Cet inconvénient majeur est la raison pour laquelle la mesure neutronique en coïncidence, présentée dans le paragraphe suivant, est plus couramment utilisée que le comptage total pour les fûts de déchets radioactifs.

2.1.3 Comptage des coïncidences neutroniques

Le comptage des coïncidences exploite la corrélation temporelle des neutrons de fissions spontanées et permet de soustraire la contribution des neutrons parasites dus aux réactions (α,n) , dits « célibataires », qui sont eux distribués de manière aléatoire dans le temps, selon une loi de Poisson.

La mesure neutronique des coïncidences consiste, dans sa version la plus utilisée, à compter des paires de neutrons de fissions spontanées dans les données mesurées. Le train d'impulsions contient des neutrons issus de fissions spontanées ou induites, des neutrons de réactions (α,n) et des neutrons d'origines externes (bruit de fond environnant), c'est-à-dire à la fois des neutrons corrélés de fissions spontanées (voire du bruit de fond) susceptibles de générer des paires, mais aussi des neutrons non corrélés de réactions (α,n) qui ne génèrent des paires que de

manière accidentelle. Il est possible de visualiser les paires d'impulsions corrélées dites « réelles » et les paires non corrélées dites « accidentelles » à l'aide d'un histogramme représentant la distribution des temps d'arrivée des impulsions après une première détection, connu sous le nom de courbe « Rossi-alpha », du nom de son inventeur Bruno Rossi dans le domaine de la physique des réacteurs, voir Figure 2.

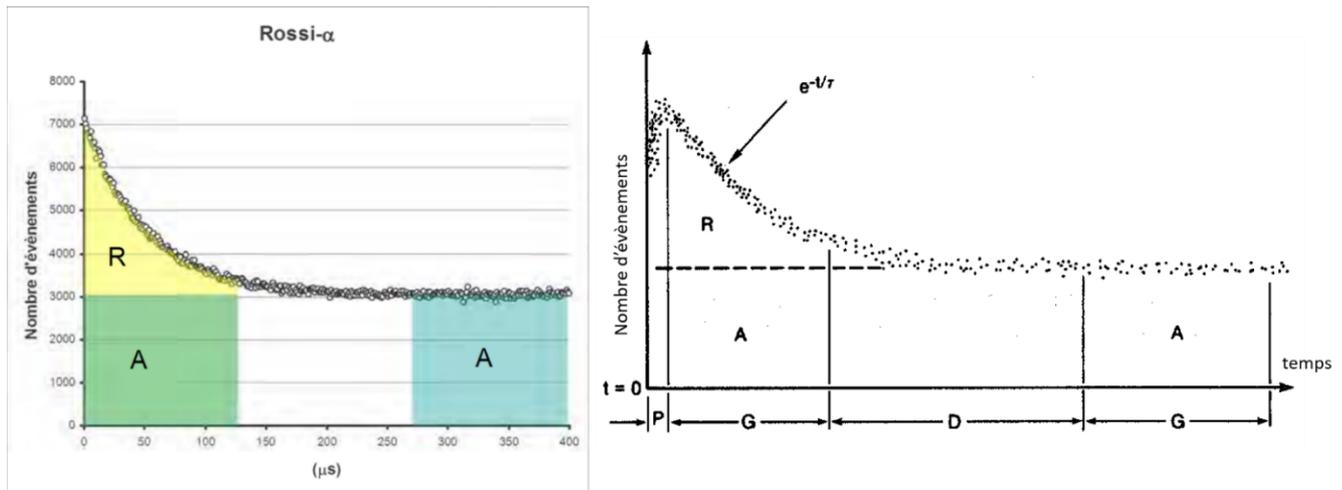


Figure 2. Courbe de Rossi-alpha issue de la simulation (à gauche [Porcher2013]) et d'une mesure (à droite [Ensslin1991_11]) d'une source de californium 252.

La distribution temporelle varie selon une exponentielle décroissante liée à la durée moyenne de détection des neutrons dans le système de mesure. Elle peut s'écrire de la manière suivante [Ensslin1998] :

$$N(t) = A + R e^{-\frac{t}{\tau}} \quad (7)$$

où :

- τ est la durée de détection moyenne d'un neutron dans le système de mesure, dépendante de la géométrie source-détecteur (matrice, volume des colis de déchets, etc.). De ce paramètre dépend la durée optimale de la fenêtre de coïncidence G , qui doit être suffisamment grande pour prendre en compte toutes les corrélations, mais pas trop longue pour limiter le taux de comptage de paires accidentelles représenté par A ;
- A représente le taux de comptage des paires accidentelles. Plus l'intervalle temporel t entre deux impulsions est grand devant τ , plus la probabilité que les deux impulsions ne soient pas corrélées est importante ;
- R représente le taux de comptage réel des paires. Plus l'intervalle temporel t entre deux impulsions est petit devant τ , plus la probabilité que les deux impulsions soient corrélées est importante.

Il est important de noter que dans le cas d'une courbe de Rossi-alpha issue d'une mesure (courbe de droite de la Figure 2), une perte de taux de comptage est observée dans les premières microsecondes de l'histogramme (typiquement 3 à 6 μs [Ensslin1991_16]) en raison notamment du temps mort dû à la durée de restauration de la ligne de base après une impulsion (collection des charges dans le compteur avec un amplificateur ayant une constante de temps de l'ordre de la μs). Il est donc d'usage d'établir un pré-délai de l'électronique, noté P sur la Figure 2, afin d'écartier les premières microsecondes dans lesquelles les coïncidences ne peuvent être correctement mesurées [Ensslin1991_16].

Le système de comptage couramment employé pour la mesure neutronique des coïncidences est fondé sur la méthode du registre à décalage avec deux échelles de comptage [Ensslin1991_16] [Ensslin1998] [Porcher2013] :

- une échelle « $R+A$ » qui collecte toutes les combinaisons de paires possibles dans un intervalle de temps G après l'ouverture d'une fenêtre de coïncidence par chacune des impulsions enregistrées, et permet ainsi de comptabiliser les coïncidences réelles et accidentelles ;
- une échelle « A » qui, pour chaque impulsion déclenchant une fenêtre $R+A$, est décalée d'un temps au moins 10 fois supérieur à la durée de vie moyenne des neutrons dans le système (noté D sur la Figure 2) afin de ne collecter que les paires accidentelles.

Le taux de comptage réel R des paires, proportionnel à la masse recherchée de plutonium, est obtenu par soustraction $R = (R+A) - (A)$, et on soustrait de plus à R les coïncidences réelles du bruit de fond R_{BDF} obtenue lors d'une mesure sans colis de déchets ou avec un fût maquette inactif : $R_{\text{BDF}} = (R+A)_{\text{BDF}} - (A)_{\text{BDF}}$. En pratique, on soustrait R_{BDF} au signal R_{TOT} mesuré avec le colis réel : $R_{\text{NET}} = R_{\text{TOT}} - R_{\text{BDF}}$. Pour simplifier, on note R pour R_{NET} par la suite.

Du point de vue mathématique, la relation entre R et $m^{240\text{Pu}}$ peut s'effectuer en deux temps, premièrement en exprimant le nombre total de paires (combinaisons de 2 neutrons corrélés provenant d'une même fission) émis par seconde au sein de l'objet mesuré :

$$n_{240\text{Pu}}(2) = m_{240\text{Pu}}^{\text{eq}} \cdot N_{240\text{Pu}} \cdot \sum_{v \geq 2} P(v) \frac{v \times (v-1)}{2} \quad (8)$$

avec les mêmes notations que l'équation (5) et où $P(v)$ est la distribution de probabilité des valeurs de la multiplicité neutronique v des fissions spontanées (voir Tableau 2). Le terme en $v \times (v-1) / 2$ est le résultat du coefficient binomial pour déterminer le nombre de combinaisons de 2 neutrons parmi v neutrons corrélés, qui correspond à l'observable mesurée avec des registres à décalage comme on le verra en Figure 3. Pour un triplet émis ($v=3$), il est ainsi possible de constituer 3 paires. L'ensemble du terme somme est le moment factoriel d'ordre 2 (v_2) de la distribution $P(v)$ tel que défini dans le §2.1.4.

Deuxièmement, la prise en compte de l'efficacité de détection et de la fraction des coïncidences mesurées pendant la fenêtre G permet de remonter à R à partir de l'équation (8):

$$R = n_{240\text{Pu}}(2) \varepsilon^2 e^{-\frac{P}{\tau}} \left(1 - e^{-\frac{G}{\tau}}\right) = m_{240\text{Pu}} N_{240\text{Pu}} \varepsilon^2 e^{-\frac{P}{\tau}} \left(1 - e^{-\frac{G}{\tau}}\right) \sum_v P(v) \frac{v \times (v-1)}{2} \quad (9)$$

où :

- ε^2 représente la probabilité que les deux neutrons d'une paire soient détectés ;
- l'ensemble du terme exponentiel représente le facteur correctif de la fraction des coïncidences mesurées, qui est lié au pré-délai P et à la fenêtre de coïncidence G exposés précédemment.

2.1.4 Comptage neutronique des multiplicités

Chaque fission spontanée peut émettre de nombreux neutrons avec les probabilités données dans le Tableau 2 pour les différentes multiplicités. Le comptage de ces multiplicités apporte des équations supplémentaires par rapport au comptage total et des paires, qui peuvent être utiles pour les mesures de plutonium dans les colis de déchets quand il y a plus d'inconnues (masse de plutonium, coefficient de multiplication M, ratio alpha et efficacité de détection) que d'équations (comptages total, ou des singulets, et des paires, ou doublets). L'efficacité dépend en effet de l'atténuation neutronique par les matériaux constitutifs des déchets et de leur éventuel enrobage (effet de matrice), ainsi que de la position du plutonium dans le déchet (effet de localisation), paramètres souvent mal maîtrisés. Les deux informations du comptage des singulets et des doublets ne permettent de déterminer que deux de ces inconnues, ce qui nécessite d'émettre des hypothèses comme l'absence de multiplication (M est généralement proche de 1 dans les colis de déchets radioactifs, mais il est moins fréquent de pouvoir garantir la connaissance de α ou ε). Bien qu'élégant quant à son principe, le comptage des multiplicités est cependant peu utilisé pour la mesure des colis de déchets car il nécessite un rendement de détection très élevé (idéalement supérieur à 50 % car il intervient comme ε^3 pour les triplets) ou une émission neutronique par fission spontanée très importante, ce qui est rarement le cas pour les masses de plutonium présentes dans les déchets [Porcher2013]. Une évolution du système de comptage par la méthode du registre à décalage est possible afin de prendre en compte les différents ordres de multiplicités. Le principe de fonctionnement est présenté dans la Figure 3 suivante :

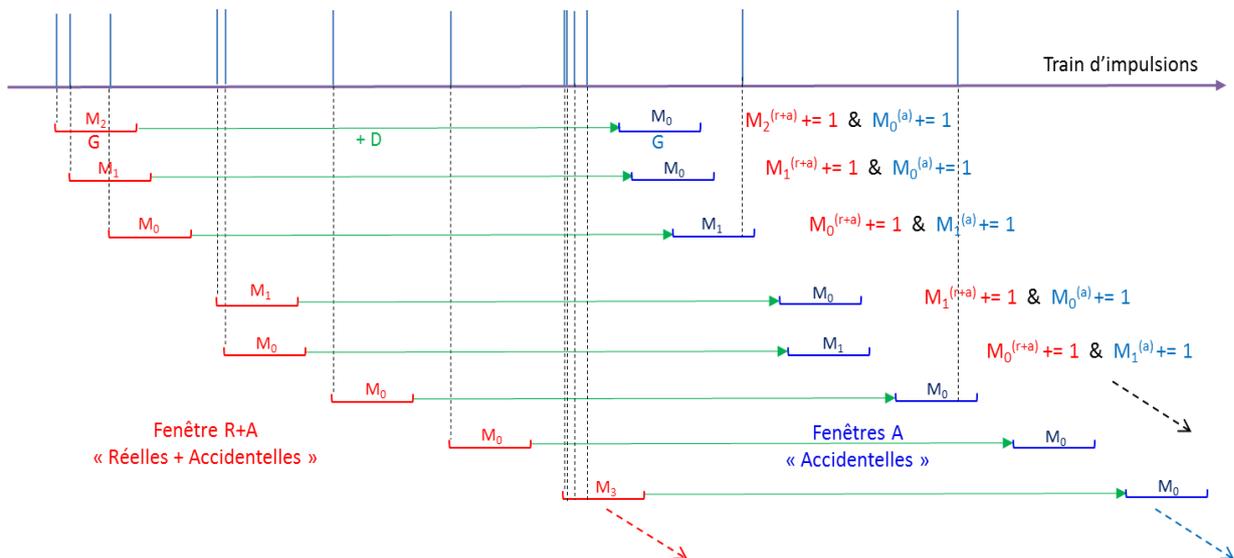


Figure 3. Illustration de la méthode du registre à décalage pour le comptage des multiplicités. M_0 représente l'ordre de multiplicité 0 (aucune impulsion coïncidente avec l'impulsion initiatrice de la fenêtre de coïncidence R+A), M_1 l'ordre 1 (une impulsion en coïncidence avec celle initiatrice de la fenêtre, donc une paire), etc.

Le registre à décalage permet de mesurer les distributions des multiplicités dans les fenêtres « R+A » et les fenêtres « A » tel que présenté dans le Tableau 4 suivant :

Tableau 4. Distribution des multiplicités neutroniques obtenues à partir d'une mesure d'un échantillon de 60 g de PuO₂ (système d'efficacité de détection $\varepsilon = 56\%$) [Ensslin1998].

Ordre des multiplicités	R+A	A
M0	26 804 360	29 731 130
M1	8 187 530	6 222 207
M2	1 772 831	1 016 603
M3	325 270	157 224
M4	53 449	22 387
M5	8 231	3 093
M6	1 237	402
M7	183	42
M8	30	8

La distribution (R+A) est le résultat des contributions d'une distribution R des coïncidences multiples réelles et d'une distribution A des coïncidences accidentelles, qu'il est nécessaire de déconvoluer pour extraire les coïncidences réelles d'impulsions issues d'une même fission, notées doublets D et triplets T. L'Annexe 1 décrit la démonstration qui permet d'aboutir aux expressions littérales des taux de singulets, doublets et triplets en fonction des paramètres du système de mesure et des propriétés de l'objet mesuré [Ensslin1998], dont nous ne donnons ici que l'expression finale :

$$S = m_{240Pu}^{eq} N_{240Pu} \varepsilon M v_1 = m_{240Pu}^{eq} N_{240Pu} \varepsilon M v_{s1} (1 + \alpha) \quad (10)$$

$$D = \frac{m_{240Pu}^{eq} N_{240Pu} \varepsilon^2 M^2 f(t)}{2} \left(v_{s2} + \left(\frac{M-1}{v_{i1}-1} \right) v_{s1} (1 + \alpha) v_{i2} \right) \quad (11)$$

$$T = \frac{m_{240Pu}^{eq} N_{240Pu} \varepsilon^3 M^3 f(t)^2}{6} \left[v_{s3} + \left(\frac{M-1}{v_{i1}-1} \right) [3v_{s2} v_{i2} + v_{s1} (1 + \alpha) v_{i3}] + 3 \left(\frac{M-1}{v_{i1}-1} \right)^2 v_{s1} (1 + \alpha) v_{i2}^2 \right] \quad (12)$$

où :

- v_{s1} , v_{s2} et v_{s3} sont les 3 premiers moments factoriels de la distribution des neutrons de fissions spontanées ;
- v_{i1} , v_{i2} et v_{i3} sont les 3 premiers moments factoriels de la distribution des neutrons de fissions induites ;
- $f(t)$ est le facteur correctif de la fraction des multiplicités comptées correspondant au terme $e^{-\frac{P}{\tau}} \left(1 - e^{-\frac{G}{\tau}} \right)$ de l'équation (9), lié au pré-délai P et à la fenêtre de coïncidences G, car on intègre les multiplicités entre P et P+G (voir Figure 2).

De manière générale, les moments factoriels v_k de la distribution $P(v)$ s'expriment comme :

$$v_k = \sum_k \frac{v!}{(v-k)!} P(v) \quad (13)$$

Les trois premiers moments factoriels de cette distribution sont donc donnés par les équations suivantes :

$$v_1 = \sum_{v \geq 1} v P(v) \quad (14)$$

$$v_2 = \sum_{v \geq 2} v(v-1) P(v) \quad (15)$$

$$v_3 = \sum_{v \geq 3} v(v-1)(v-2) P(v) \quad (16)$$

Les équations (10), (11) et (12) permettent d'extraire trois inconnues parmi les quatre grandeurs d'intérêt : efficacité de détection ε , masse équivalente en plutonium $240 m_{240Pu}^{eq}$, facteur multiplicatif M et ratio α . Trois de ces paramètres sont donc quantifiables à condition de connaître le quatrième et comme on l'a dit plus haut, en général on peut considérer que $M = 1$ pour les colis de déchets radioactifs.

Il est important de noter que ces formules ne s'appliquent que si un neutron ne peut générer qu'une seule impulsion dans le système de détection, comme c'est le cas avec les compteurs à hélium 3 (capture des neutrons). Par contre, pour des systèmes de détection des neutrons rapides basés sur la diffusion élastique (scintillateurs organiques à protons de recul), un même neutron peut induire plusieurs impulsions et donc des coïncidences réelles parasites. Ce phénomène, appelé « diaphonie », doit alors être corrigé comme détaillé dans le §4.3 de ce document.

2.2 CRITERES DE PERFORMANCE D'UN DISPOSITIF DE MESURE NEUTRONIQUE PASSIVE

2.2.1 Efficacité de détection

Le système de mesure neutronique passive doit couvrir un angle solide de détection le plus important possible autour de l'objet mesuré afin de présenter une efficacité de détection des neutrons la plus grande possible en vue du comptage des paires et des triplets, respectivement affectés par le carré et par le cube de l'efficacité, voir équations (11) et (12). Les systèmes de mesure neutronique classiques des coïncidences (comptage des paires) pour colis de déchets ont des efficacités de détection généralement comprises entre 5 et 25 % [Pérot2018]. Pour le comptage des multiplicités, notamment dans le domaine du contrôle des matières nucléaires (conteneurs de petits volumes), elles atteignent 40 à 60 % [Ensslin1998].

2.2.2 Durée de détection moyenne des neutrons dans le système

Le temps de détection moyen des neutrons (lié au temps de thermalisation pour des compteurs à ^3He ou au temps de vol jusqu'aux détecteurs pour des scintillateurs organiques) dans une géométrie de mesure donnée est doit être le plus court possible afin de limiter la largeur de la fenêtre de comptage des coïncidences et par suite le nombre de coïncidences accidentelles [Menlove2011][Ensslin1991_16]. Un facteur de mérite du système souvent utilisé pour optimiser les systèmes de mesure neutronique passive des coïncidences est le ratio de l'efficacité de détection et de la racine carrée du temps de détection moyen des neutrons. Ce facteur de mérite est directement proportionnel à la précision statistique sur le comptage des paires [Menlove2011]. L'histogramme des temps de détection des neutrons après leur émission suit généralement une loi exponentielle, ou la somme de plusieurs exponentielles dont la principale est liée au système de détection et les secondaires aux interactions des neutrons dans le colis de déchets ou l'environnement. On parlera par la suite de manière équivalente de durée moyenne de détection ou de durée de vie des neutrons dans le système de détection.

2.2.3 Temps mort

Des détecteurs de grand volume et d'efficacité intrinsèque importante sont susceptibles d'enregistrer de forts taux de comptages et donc de subir des pertes de comptage en raison du temps mort du système d'acquisition, a fortiori pour les comptages des doublets et triplets (plus que pour le comptage total) [Ensslin1991] [Menlove2011]. Le temps mort du détecteur et de sa chaîne électronique est de l'ordre de quelques microsecondes avec des compteurs à ^3He contre seulement quelques dizaines de nanosecondes avec des scintillateurs PVT. Les cartes de datation numérique actuelles, qui permettent de réaliser l'analyse des coïncidences et des multiplicités en remplacement des registres à décalage historiques, n'apportent pas de temps mort additionnel significatif [Deyglun2014_a].

2.2.4 Sensibilité aux rayonnements gamma

Contrairement aux applications liées à la sécurité des territoires, les mesures des déchets radioactifs s'effectuent parfois sur des colis fortement émetteurs de rayonnements gamma. Le système de détection pour caractériser le plutonium dans les fûts de déchets radioactifs peut être exposé à des débits de dose gamma en surface de fût pouvant aller de quelques fractions de $\text{mGy}\cdot\text{h}^{-1}$ (colis contaminés en plutonium et uranium uniquement) à l'ordre du $\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ (colis irradiants avec également des produits de fission et d'activation) [McElroy2015]. Avec des compteurs à hélium 3, les empilements d'impulsions gamma de faibles amplitudes peuvent conduire à des comptages parasites au-delà du seuil de discrimination. La Figure 4 présente les effets de ces empilements en fonction du débit de dose gamma pour un préamplificateur à collection de charge. La limite acceptable en débit de dose gamma pour les compteurs hélium 3 est alors de 0.01 à 0.1 $\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ (1 à 10 $\text{rad}\cdot\text{h}^{-1}$) [Crane1991]. Il est possible de repousser cette limite en utilisant un amplificateur de courant, mais au détriment de la séparation entre le pic thermique (bien visible sur la courbe A) et le bruit de fond électronique et gamma, et par suite de l'efficacité de détection puisque le seuil de détection fait alors perdre des événements neutroniques utiles [Pérot1996].

Les systèmes de mesure doivent alors inclure des écrans gamma (par exemple en plomb) qui ont relativement peu d'impact en termes d'atténuation neutronique, réduisant légèrement l'efficacité de détection ce qui peut néanmoins avoir un effet significatif sur les coïncidences d'ordre élevé (mesure des multiplicités), voire sur le bruit de fond (production de neutrons dû au rayonnement cosmique).

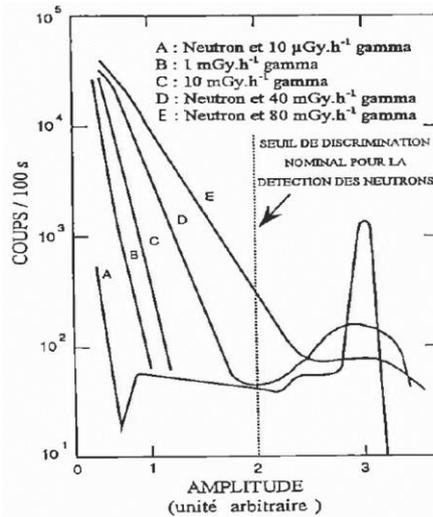


Figure 4. Effet des empilements d'impulsions de rayonnements gamma sur le comptage neutronique avec des compteurs à hélium-3 (tube de 2.54 cm de diamètre et 50.8 cm de longueur) [Perot1996].

2.3 EXEMPLES DE SYSTEMES POUR LES MESURES DE COLIS DE DECHETS

Nous présentons ici juste deux exemples de postes de mesure avec détecteurs à hélium 3, mais il en existe des dizaines de modèles différents de par le monde. Les activités d'assainissement et de démantèlement de l'Installation Nucléaire de Base (INB) PEGASE, située au CEA Cadarache, ont engendré le besoin de caractériser 2714 fûts historiques de déchets technologiques radioactifs contaminés au plutonium. Ces déchets technologiques (verre, plastiques, métaux, cellulose, etc.) sont issus d'anciennes activités de fabrication de combustible mixte d'oxyde d'uranium et d'oxyde de plutonium (MOX) qui ont eu lieu entre les années 1980 et 1997 [Jallu2012]. Afin de caractériser le plutonium dans ces déchets, le CEA a conçu un dispositif de mesure des coïncidences neutroniques présenté dans la Figure 5. Le dispositif est constitué de parois en polyéthylène dans lesquelles sont placés les compteurs à hélium 3, recouvertes de cadmium à l'intérieur de la cellule et de carbure de bore à l'extérieur, pour limiter le temps de vie des neutrons dans le système de détection, les variations d'efficacité de détection en fonction des différentes matrices de déchets et les effets de multiplication par fissions induites. Par ailleurs, du plâtre au polyéthylène boré, situé derrière le carbure de bore, permet d'isoler le système de mesure du bruit de fond neutronique extérieur tout en assurant une fonction de protection biologique. Les 4 panneaux latéraux contiennent chacun une rangée de 9 compteurs de diamètre 2.54 cm et de longueur 65 cm remplis d'hélium 3 à une pression de 4.10^5 Pa (ou 4 bar en unité usuelle pour ce type de compteurs). Ce système atteint une efficacité de détection en comptage total de l'ordre de 10 % pour une source nue de californium 252 au centre de la cavité. En présence des matrices dans les fûts de déchets, plus ou moins thermalisantes, celle-ci varie environ de 9% (matrices hydrogénées comme du PCV ou du bois de densités élevées, proches de 0.4) à 10.5% (même matrices mais de densités proches de 0.1, ou matrice métallique). La durée de détection moyenne des neutrons dans le système est de 53 μ s et varie peu en fonction des différentes matrices [Jallu2011]. La masse de plutonium mesurée est annoncée avec une incertitude de 30% en comptage des coïncidences, en incluant les effets de matrice et de méconnaissance de la position du plutonium dans le colis, avec un niveau de confiance de 95% (2σ) [Jallu2011].

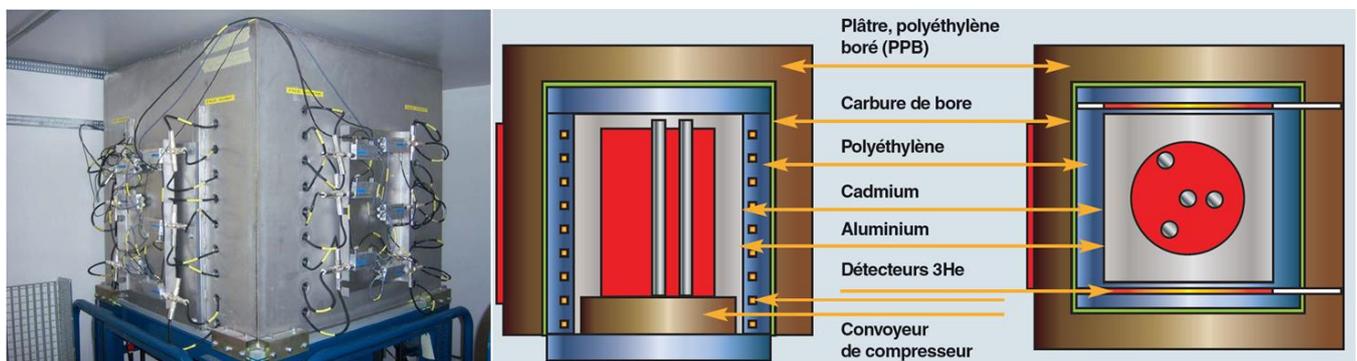


Figure 5. Illustration et modélisation MCNP du poste de mesure neutronique des coïncidences de l'INB PEGASE, au CEA Cadarache [Jallu2011] [DEN2019].

Le « High-Efficiency Neutron Counter » (HENC) est un dispositif de mesure neutronique passive élaboré par le laboratoire américain de Los Alamos (LANL), en collaboration avec Canberra Industries (aujourd'hui Mirion Technologies), dans le but de mesurer avec précision le plutonium dans des échantillons et des fûts de déchets radioactifs jusqu'à 200 litres [Menlove1996]. Le modèle WM3100, toujours commercialisé par Mirion Technologies, est présenté en Figure 6. Ce dispositif, qui comprend 113 compteurs de 2.54 cm de diamètre et 100 cm de longueur remplis à 7.5×10^5 Pa (7,5 bar) d'hélium 3, présente une efficacité de détection de l'ordre de 32 % pour une source

nue de californium 252 au centre de la cavité, ainsi qu'une durée de détection moyenne des neutrons de 50 μ s [Mirion_WM3100] [Menlove1996]. Au début des années 2000, le concept du HENC a été amélioré pour permettre la combinaison de plusieurs méthodes de caractérisation non destructives dans un seul dispositif appelé « Integrated Waste Assay System » (IWAS), également commercialisé par Mirion Technologies [Mirion_IWAS]. Il permet de déterminer l'isotopie du plutonium par spectrométrie gamma et de compléter la mesure neutronique passive par une mesure active avec un générateur de neutrons pulsé si le signal des fissions spontanées est trop faible (émission trop faible ou atténuation trop grande par la matrice), ou en présence de curium dans le fût de déchets qui masquerait le signal du plutonium.



Figure 6. Illustration du WM3100, un HENC commercialisé par Mirion Technologies [Mirion_WM3100].

Ce dernier point est la principale limitation car le curium est, comme le plutonium, un émetteur neutronique par fission spontanée et les techniques de coïncidences, que ce soit le comptage des paires et même l'analyse des multiplicités, ne permettent en général pas de distinguer les deux contributions, du moins avec une précision suffisante dans les colis de déchets. Il s'ensuit un risque de forte surestimation de la quantité de plutonium car le curium est un émetteur neutronique très intense par fission spontanée, et la mesure neutronique active doit alors être envisagée. C'est notamment le cas des déchets métalliques de haute activité issus du retraitement des combustibles usés de l'usine ORANO La Hague (colis de coques et embouts) dont les émissions gamma et neutroniques du plutonium sont totalement masquées par celles des produits d'activation et de fission (^{60}Co , ^{137}Cs , etc.) et du curium (^{242}Cm , ^{244}Cm), respectivement [Toubon2001].

3. RECHERCHES D'ALTERNATIVES AUX COMPTEURS A HELIUM 3

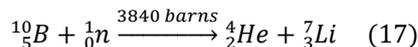
3.1 INTRODUCTION AUX RECHERCHES D'ALTERNATIVES

Il n'existe à ce jour pas de technologie combinant tous les avantages des compteurs hélium 3 pour les mesures neutroniques des déchets radioactifs. Certaines recherches ont pour objectif d'effectuer un remplacement direct des compteurs hélium 3 par des détecteurs similaires (compteurs proportionnels à gaz) et de la même géométrie, sensibles aux neutrons thermiques, qui donc pourraient se substituer dans les postes de mesure existants en conservant les mêmes matériaux modérateurs autour des compteurs et électroniques et d'acquisition. Ces technologies sont par exemple les compteurs proportionnels gazeux à gaz de BF_3 ou à dépôt de bore, voir §3.2.

D'autres technologies plus innovantes, fondées sur la scintillation, visent à offrir certains avantages par rapport aux compteurs proportionnels, notamment en termes de rapidité de réponse, tout en visant à se rapprocher le plus possible des caractéristiques de robustesse, de fiabilité et de durabilité notables des compteurs à hélium 3, tout en réduisant le coût. Les scintillateurs sont potentiellement beaucoup plus rapides que les compteurs proportionnels mais ils présentent une sensibilité aux rayonnements gamma qu'il est nécessaire de discriminer du signal neutronique. Des technologies de scintillateurs inorganiques et organiques sont présentées et discutées dans le §3.3.

3.2 COMPTEURS GAZEUX ET A DEPOT DE BORE

Ces compteurs proportionnels sont très similaires aux détecteurs à hélium 3 et permettent d'envisager un remplacement direct dans les systèmes de mesure [Simpson2011] [Kouzes2014] [McElroy2014] [McElroy2015]. Les isotopes de bore 10 qu'ils contiennent (gaz de trifluorure de bore ou dépôt de bore sur les parois) capturent les neutrons thermiques avec une section efficace de 3840 barns selon la réaction (n, α) suivante [Simpson2011] [Pawelczak2014] :



Le trifluorure de bore permet d'obtenir une très bonne séparation neutron-gamma y compris pour des taux de comptages potentiellement élevés rencontrés dans les mesures des colis de déchets radioactifs. De plus, il est disponible à un prix intéressant [Perdersen2015]. L'inconvénient majeur de ce type de compteur est la nature extrêmement toxique de ce gaz de substitution, qui les rend difficiles à fabriquer (la plupart des fournisseurs ont arrêté leur production) et inaptes à respecter les critères de sûreté des installations nucléaires. La toxicité de ce gaz, ainsi que la perte de la linéarité du signal pour des pressions importantes, engendrent une limitation sur la pression de remplissage qui doit être inférieure à 10^5 Pa, par rapport à celle de l'hélium 3 (typiquement $4 \cdot 10^5$ Pa, voire plus pour les systèmes de mesure des multiplicités) [Simpson2011] [Pedersen2015]. Cette limitation se traduit par une diminution de l'efficacité de détection et un allongement de la durée de vie moyenne des neutrons car leur parcours moyen est plus important avant la détection. Par exemple, la durée moyenne de détection des neutrons pour le *High-Level Neutron Coincidence Counter* (HLNCC) de référence est de $42 \mu\text{s}$ tandis qu'un système équivalent avec compteurs à trifluorure de bore montre une durée moyenne de détection de $84 \mu\text{s}$ [McElroy2015]. De plus, un tube hélium 3 de 2.54 cm de diamètre a une efficacité intrinsèque de 77 % pour les neutrons thermiques, tandis que le même tube rempli à $0.92 \cdot 10^5$ Pa de trifluorure de bore a une efficacité de détection de 18 % [McElroy2015]. La plupart de ces dispositifs sont dimensionnés pour des contrôles de matière nucléaire dans des échantillons de volume très inférieur (quelques litres) aux volumes des colis de déchets (quelques centaines de litres). En 2011, des simulations numériques réalisées pour un dispositif de mesure de fût de déchets de 200 litres ont montré que, dans le meilleur des cas, un système équipé de compteurs au trifluorure de bore n'atteindrait que la moitié de l'efficacité totale d'un système équivalent à l'hélium 3, pour des temps de vie moyen des neutrons 2 à 3 fois plus importants [Simpson2011]. Cette alternative n'est donc pas viable, autant en termes de performances que de sécurité.

Contrairement aux compteurs BF_3 , ceux à dépôt de bore ne présentent aucune limitation en termes de sûreté. Le milieu actif est constitué par des dépôts de B_4C (enrichi en ${}^{10}\text{B}$) sur les parois des compteurs, le gaz étant le plus souvent transparent du point de vue neutronique (par ex. de l'argon). Ces compteurs présentent aussi une sensibilité aux ambiances de rayonnements gamma encore plus faible que les compteurs à hélium 3 [Kouzes2014] [McElroy2014]. Cependant, la limitation principale de ces compteurs est une efficacité de détection moindre que celle des compteurs à hélium 3. Le dépôt de bore est limité en termes d'épaisseur, qui est typiquement de l'ordre du micron, car au-delà les ions α et ${}^7\text{Li}$ issus de la réaction d'absorption ${}^{10}\text{B}(n,\alpha){}^7\text{Li}$ y sont auto-absorbés et l'efficacité sature et même diminue au-delà d'une certaine épaisseur [Kouzes2014] [McElroy2015]. Le *High Level Neutron Counter – Boron* (HLNB) a été conçu au laboratoire américain de Los Alamos (LANL) pour un remplacement du HLNCC-II de référence, tous deux présentés dans la Figure 7. Le HLNB dispose de 6 modules rectangulaires composés chacun de 6 chambres de détection où la surface du dépôt de bore est maximisée et couvrant un angle solide de détection de quasiment 4π stéradians [Henzlova2013] [Henzlova2015]. En comparaison avec le système de référence HLNCC constitué de seulement 18 compteurs à hélium 3 sous la forme de tubes cylindriques, ses performances sont légèrement meilleures en termes d'efficacité totale de détection (18.8 % contre 17.5 %) mais bien moins intéressantes en ce qui concerne le temps de vie moyen des neutrons ($75 \mu\text{s}$ contre $43 \mu\text{s}$) [Henzlova2015]. On peut utiliser davantage de compteurs à dépôt de bore pour accroître encore l'efficacité et tendre vers des temps de détection des neutrons similaires à ceux des systèmes à base de compteurs à hélium 3, mais alors les budgets totaux en termes de compteurs, de voies électroniques et de réalisation mécanique seraient voisins.

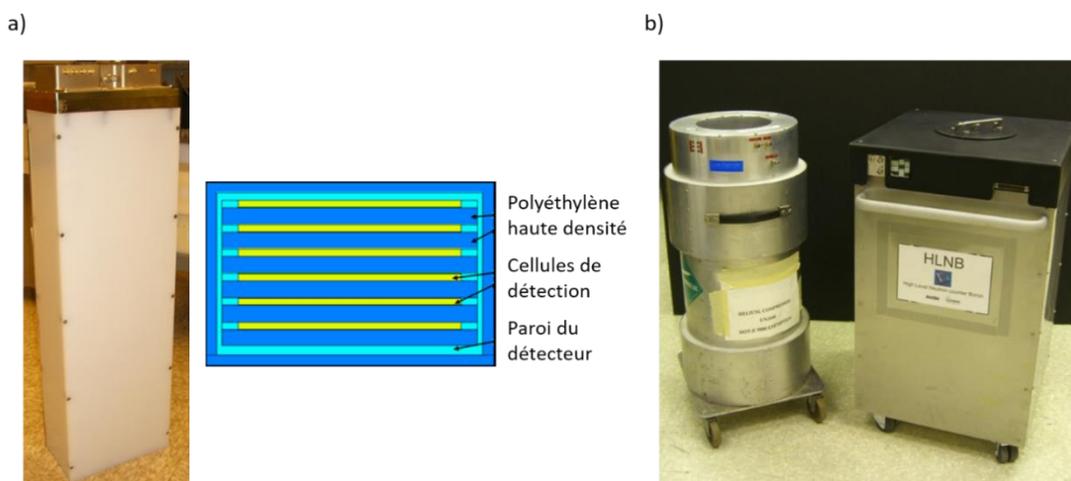


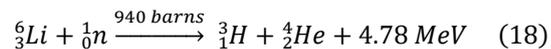
Figure 7. (a) Illustration d'un module de détection du HLNB et sa composition ; (b) Illustration des dispositifs complets du HLNCC-II et du HLNB [Henzlova2015].

Parmi les solutions alternatives explorées, on peut noter les compteurs à dépôt de bore « mixtes » avec un remplissage en hélium 3 sous une pression de 1 bar, ce qui permet d'augmenter l'efficacité de détection à coût moindre que des détecteurs à hélium 3 de pression plus élevée. Cependant, une étude par simulation numérique a montré qu'un système expérimental à compteurs mixtes $^{10}\text{B}/^3\text{He}$ pour la caractérisation de colis de déchets de 118 litres atteint 85 % de l'efficacité totale de détection d'un dispositif de référence avec le même nombre de compteurs à hélium 3 avec par contre un temps de détection moyen des neutrons 40 % supérieur [Eleon2018], ce qui le rend moins nettement moins performant. D'autres alternatives on consisté à réaliser des tubes de petit diamètre (« pailles à dépôt de bore » ou *Boron Coated Straw* BCS) pour accroître la surface active du dépôt de bore dans un volume de détection donné. Ces modèles permettent d'atteindre des performances équivalentes aux compteurs à hélium 3 dans les contrôles de matières nucléaires pour la non-prolifération [Lacy2013] [McElroy2015] mais pour des colis de déchets radioactifs de 118 L, un système à base de BCS n'atteindrait que 55 % de l'efficacité d'un système de référence à hélium 3 avec le même nombre de compteurs et une vie moyenne des neutrons 80 % plus élevée. Comme évoqué plus haut, les performances pourraient être approchées avec un plus grand nombre de ces compteurs BCS mais le coût du système de mesure complet serait alors équivalent, voire supérieur, à celui à base de détecteurs à hélium 3 [Eleon2018].

3.3 DETECTEURS A SCINTILLATION

3.3.1 Les scintillateurs inorganiques

Les scintillateurs inorganiques (NaI(Tl), BGO, CsI, etc.) sont surtout destinés à la spectrométrie gamma car ils présentent des densités électroniques élevées (bonne efficacité de détection gamma) ainsi que de bons rendements lumineux (résolution énergétique correcte). Certains scintillateurs inorganiques peuvent néanmoins être intéressants pour la détection des neutrons thermiques moyennant l'ajout d'absorbants neutroniques tels que le bore 10 selon l'équation (17) précédemment mentionnée, ou le lithium 6 selon l'équation (18) [Sears1992] :



Les plus notables sont les scintillateurs ${}^6\text{LiF}/\text{ZnS}(\text{Ag})$ [vanEijk2004] [Robinson2015] [Scheer2015] [Tagziria2015], les verres inorganiques de type ${}^6\text{Li}(\text{Ce})$ [vanEijk2012] [Ilanakiev2014] [Hehlen2018] [Wengrowicz2020], ou bien les cristaux de type « A_2BMX_6 » (avec $\text{A} = \text{Rb}$ ou Cs ; $\text{B} = \text{Li}$, Na ou K ; $\text{M} = \text{Y}$ ou La-Lu ; $\text{X} = \text{F}$, Cl , Br ou I [VanLoef2002]), aussi appelés « elpasolites » [Johnson2015] [Glodo2017] [Martinez2018] [Cieslak2019].

Leur sensibilité aux neutrons thermiques nécessite donc une thermalisation préalable des neutrons émis dans le colis de déchets et rallonge considérablement leur temps de vie moyen dans le système (de l'ordre de plusieurs microsecondes, comme pour les compteurs gazeux) par rapport à la détection des neutrons rapides avec les scintillateurs organiques à proton de recul (voir paragraphes suivants). De plus, ils sont par nature très sensibles aux rayonnements gamma et nécessitent des algorithmes de discrimination basés sur l'amplitude des impulsions (PHD, *Pulse Height Discrimination*) et leur forme (PSD, *Pulse Shape Discrimination*). Ceci induit des limitations avec les détecteurs de grand volume, dans lesquels les réflexions des photons lumineux de scintillation dégradent la forme des impulsions, ainsi qu'à fort taux de comptage à cause des empilements d'impulsions qui font également perdre cette information [Paff2016]. Le principe de la PSD et ses applications seront discutés plus en détail plus bas pour les scintillateurs organiques. A ces limitations peuvent s'ajouter les volumes limitées dans les méthodes de conception pour les elpasolites [Glodo2017] [Martinez2018] [Cieslak2019], ou bien le besoin de conserver des volumes très petits pour les ${}^6\text{Li}(\text{Ce})$ afin de pouvoir y appliquer la PHD [Ilanakiev2014] [Hehlen2018]. Or comme on l'a signalé plus haut, les mesures neutroniques des coïncidences nécessitent une efficacité de détection élevée et, pour les colis de déchets radioactifs, des détecteurs de grand volume, sauf à utiliser un grand nombre de petits détecteurs avec leurs voies électroniques, rendant le coût et la complexité du système de mesure rédhibitoires.

Des efforts ont été fournis pour produire des scintillateurs composites (petits volumes de détection inorganiques au sein d'un grand volume de détection organique) afin de bénéficier des avantages des scintillateurs inorganiques tout en maximisant les efficacités de détection [Gueorguiev2015] [Shirwadkar2017] [Mayer2015] [Henzlova2015] [Hehlen2018] [Lam2018] mais les volumes restent limités à l'ordre du litre et le coût du système de mesure complet ne serait pas avantageux en comparaison avec des compteurs à hélium 3.

3.3.2 Les scintillateurs organiques liquides

Contrairement aux scintillateurs inorganiques, les scintillateurs organiques sont composés d'éléments chimiques de faibles numéros atomiques, ce qui les rend inaptes à la spectrométrie gamma car l'effet Compton y est très largement prédominant par rapport à l'effet photoélectrique, d'où l'absence de pics d'absorption totale. Seules les mesures de sources à raie gamma unique sont exploitables grâce au front Compton. De plus, la résolution énergétique de ces détecteurs est très mauvaise et pour une raie gamma donnée le front Compton est très étalé [Siciliano2008]. En revanche, leur teneur élevée en noyaux d'hydrogène les rend directement sensibles aux neutrons rapides grâce aux diffusions élastiques, les protons de recul excitant les cortèges électroniques des molécules de proche en proche, qui se désexcitent alors de manière radiative sous forme de rayonnement de scintillation (ou bien de manière non radiative sous forme de chaleur comme nous le verrons plus bas) [Knoll1989].

De ce fait, les scintillateurs organiques liquides sont très largement étudiés pour le remplacement des compteurs à hélium 3. Ils constituent même une référence pour la plupart des scintillateurs organiques qui cherchent d'abord à se positionner par rapport aux performances des scintillateurs liquides avant même de se comparer aux compteurs à hélium 3. Les scintillateurs liquides ont des impulsions courtes (moins de 1 μ s) et d'excellentes capacités de discrimination neutron-gamma par PSD [Yousefi2009]. Les protons et les noyaux de carbone de recul, générés par la diffusion élastique des neutrons sur les noyaux d'hydrogène et de carbone, sont susceptibles d'exciter les liaisons électroniques π des doubles liaisons carbone et ainsi de peupler des états triplets qui se désexcitent par phosphorescence avec une durée de vie moyenne de l'ordre de la milliseconde. Au contraire, les électrons générés par les interactions de rayonnements gamma sont moins susceptibles de peupler les états triplets car leur coefficient de transfert d'énergie linéique dans la matière est moins important que celui des particules chargées lourdes [Knoll1989]. Le parcours des électrons peuple surtout les états singulets, qui se désexcitent par fluorescence avec une durée de vie de l'ordre de la nanoseconde. Le processus de scintillation qui suit une interaction neutronique se déroule donc dans un ordre de temps 3 fois plus long que le processus de scintillation induit par un rayonnement gamma. Les temps de scintillation pour les impulsions neutroniques sont alors bien plus importants. La Figure 8 présente les modes de désexcitation des états singulets et triplets, ainsi que les formes d'impulsions typiques pour les rayonnements gamma, les neutrons, et les particules alpha [Knoll1989].

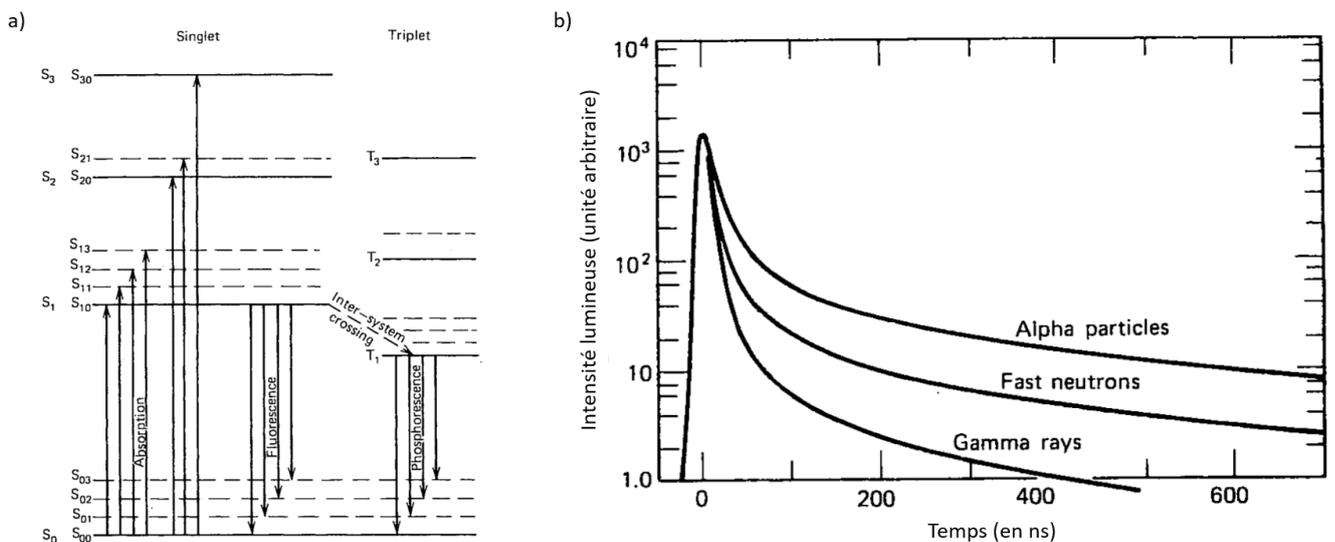


Figure 8. (a) Niveau d'énergie d'une molécule organique ayant une structure en liaison π -électron et mode de désexcitation associés des états singulets et des états triplets; (b) formes des impulsions générées par les rayonnements gamma, les particules alpha et les neutrons dans un scintillateur organique au stilbène [Knoll1989].

La PSD par intégration de la charge d'une impulsion sur deux fenêtres temporelles [Paff2016] est la méthode la plus courante pour quantifier ces différences :

- une fenêtre courte (de l'ordre de 10 ns) intègre la charge au niveau de la montée de l'impulsion, notée Q_{short} et qui sert de normalisation à l'amplitude de l'impulsion ;
- une fenêtre longue (de l'ordre de quelques centaines de nanosecondes) intègre la charge sur la traîne de l'impulsion, notée Q_{long} et qui caractérise la rémanence du processus de scintillation propre à la particule qui a engendré la scintillation.

La valeur de la charge Q_{long} peut être représentée sur un histogramme de discrimination neutron-gamma, en fonction de la valeur de la charge totale ($Q_{\text{short}} + Q_{\text{long}}$). Alternativement, la valeur du ratio $Q_{\text{long}}/(Q_{\text{short}} + Q_{\text{long}})$, couramment appelée valeur de la PSD, peut être représentée en fonction de l'énergie équivalente électron (en MeVee, définie ci-dessous). Ces deux modes de représentation sont illustrés dans la Figure 9.

A énergie déposée dans le scintillateur égale, un neutron engendre une production de photons de scintillation moins importante qu'un rayonnement gamma. Le recul dans la matière de particules chargées plus massives dans le cas des interactions des neutrons (protons et noyaux de carbone de recul) que pour celles des rayonnements gamma (électrons) engendre un pouvoir d'ionisation plus important et une concentration locale excessive de molécules excitées, entraînant une restitution non-radiative plus conséquente de l'énergie et donc une scintillation moins importante [Knoll1989]. Cette restitution non-radiative de l'énergie d'ionisation sous forme de chaleur est évoquée dans la littérature sous le terme « *ionisation quenching* ». La prise en compte de cet effet permet de convertir l'énergie déposée (en MeV) par une particule dans le matériau scintillant, en un rendement de scintillation appelé « énergie équivalente électron » (en MeVee) qui est la grandeur observée.

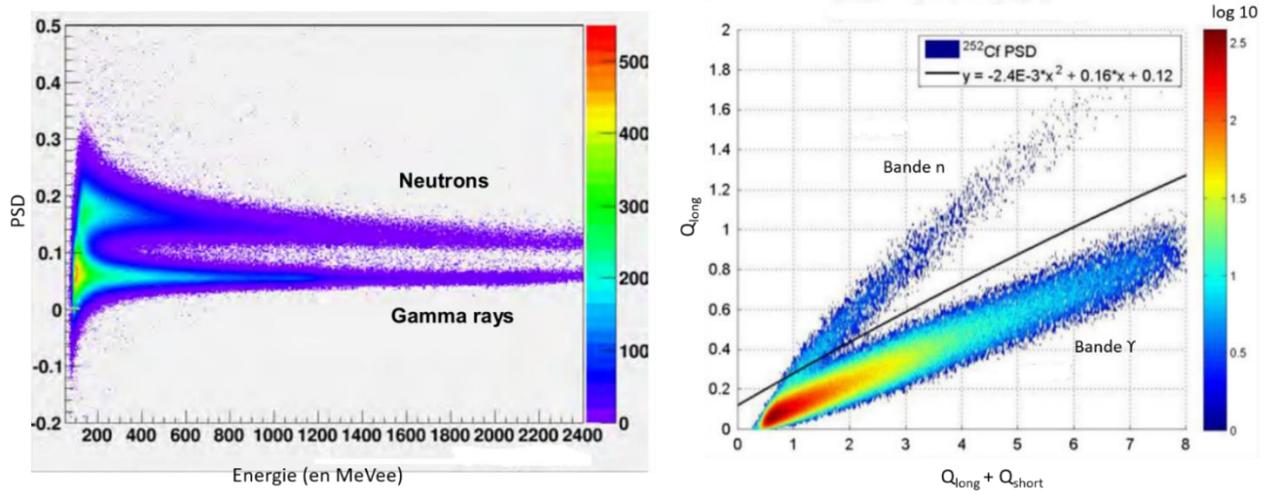


Figure 9. Discrimination neutron-gamma pour des mesures de sources de californium 252 avec des scintillateurs liquides cylindriques de type EJ-309 (7.62 cm x 7.62 cm) [EJ-301-309]. A gauche, la discrimination est réalisée en représentant la PSD (voir définition dans le texte) en fonction de l'énergie équivalente électron (MeVee, voir texte) associées à chaque impulsion [Ellis2013]. A droite, la discrimination est effectuée en représentant Q_{long} en fonction de $Q_{long} + Q_{short}$. Les fenêtres d'intégration de charge Q_{short} et Q_{long} sont ici respectivement de 40 ns et 220 ns [Paff2016].

La Figure 9 montre que plus l'énergie déposée est faible, plus difficile est la séparation des contributions neutron-gamma. Il est donc nécessaire de placer un seuil bas en énergie en deçà duquel la discrimination est impossible. Pour déterminer de façon optimale ce seuil et quantifier de manière générale la performance de la PSD, il est possible de définir un facteur de mérite qui caractérise la séparation entre les distributions des neutrons et des rayonnements gamma. La Figure 10 ci-après présente une projection sur l'axe de la PSD pour une gamme d'énergie donnée [Ellis2013]. Le facteur de mérite (*Figure Of Merit*, FOM) de la PSD est donnée par l'équation suivante :

$$FOM_{PSD} = \frac{S}{LTMH_{\gamma} + LTMH_n} \quad (19)$$

où :

- S est la séparation entre les deux centroïdes des deux fonctions gaussiennes qui ajustent les distributions des neutrons et des rayonnements gamma ;
- $LTMH_{\gamma}$ et $LTMH_n$ sont les largeurs totales à mi-hauteur des distributions gaussiennes des rayonnements gamma et des neutrons, respectivement.

Il est alors possible de tracer ce facteur de mérite en fonction de l'énergie et de fixer le seuil en conséquence, en pratique un FOM supérieur à 1.5 étant recherché [Winyard1971].

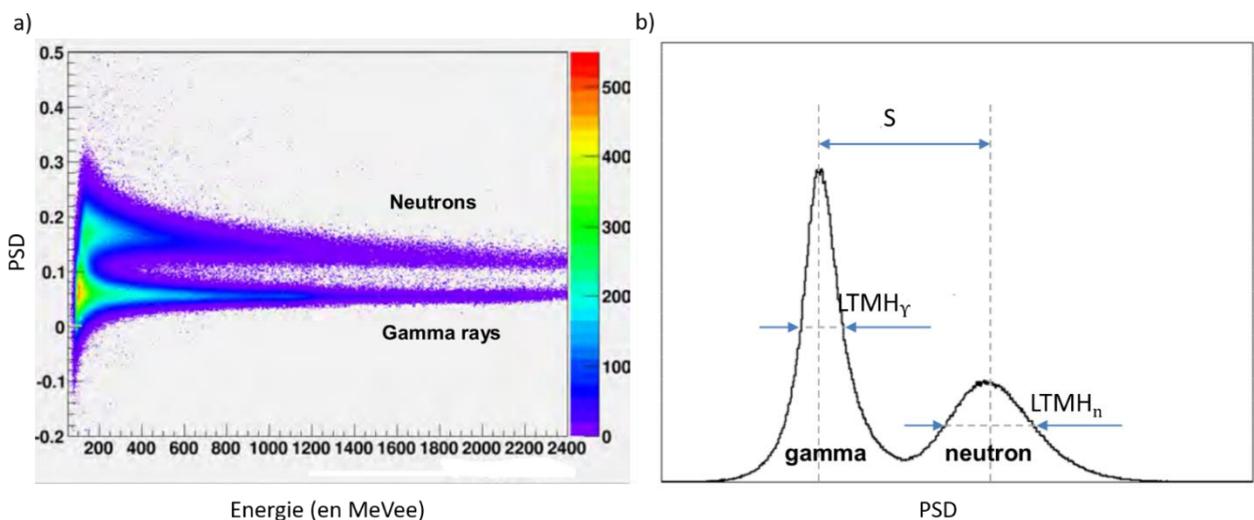


Figure 10. (a) Discrimination neutron-gamma pour des mesures de sources de californium 252 avec des scintillateurs liquides cylindriques de type EJ-309 (7.62 cm x 7.62 cm) ; (b) Distribution des PSD gamma et neutron dans une gamme d'énergie donnée [Ellis2013].

Les performances de la PSD sont également dépendantes du volume du scintillateur [Paff2016]. La Figure 11 ci-dessous présente les histogrammes de PSD pour deux cylindres de Ø 7.62 cm x L 7.62 cm et Ø 12.7 cm x 12.7 cm, et pour un parallélépipède de 25 cm x 25 cm x 10 cm de liquide organique EJ-309. La séparation neutron-gamma se dégrade nettement avec le volume du scintillateur car les réflexions multiples des photons de scintillation brulent la traîne des impulsions (rebonds) où se trouve l'information de PSD [Ellis2013]. Par ailleurs, à taux de comptage élevé, les empilements d'impulsions conduisent aussi à la perte de cette information PSD sur la traîne, qui s'étend sur plusieurs centaines de nanosecondes [Dolan2014]. Les efforts pour améliorer la PSD ont été nombreux, avec par exemple l'analyse des gradients d'impulsions [D'Mellow2007] [Gamage2015], des gradients de fréquence [Liu2010], des fronts de montée [Nakhostin2013] ou encore la décomposition en ondelettes [Langeveld2017] [Langeveld2020]. Ces algorithmes visent à identifier la nature de la particule avant apparition des perturbations de l'impulsion dues aux réflexions de lumière ou aux empilements.

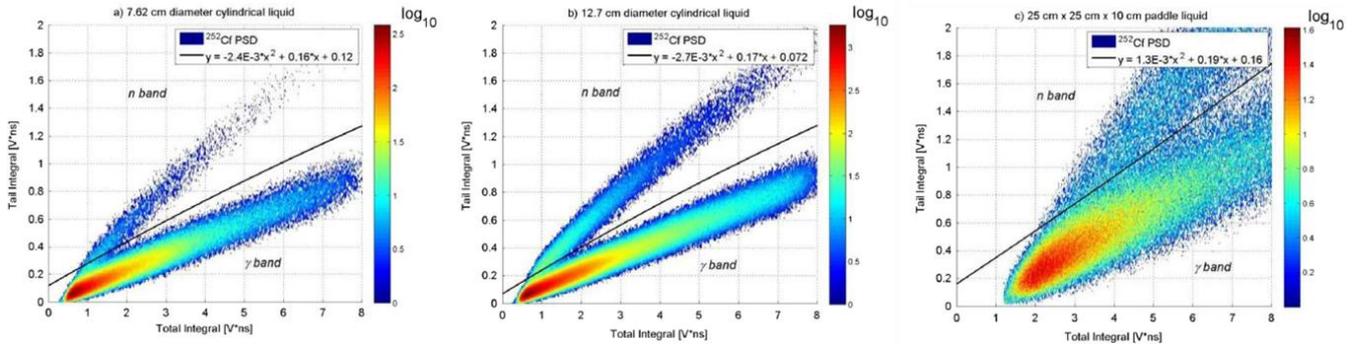
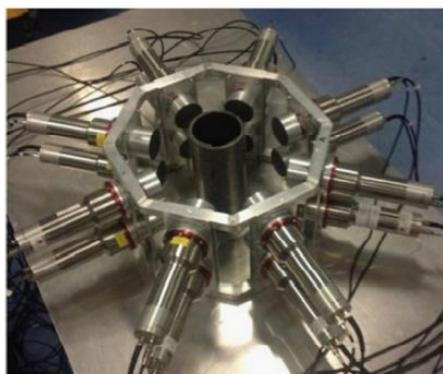


Figure 11. Histogrammes de discrimination neutron-gamma par PSD avec la méthode de comparaison des charges pour une source de californium 252 mesurée avec un scintillateur liquide EJ-309 cylindrique de dimensions (a) Ø 7.62 cm x L 7.62 cm, (b) 12.7 cm Ø X 12.7 cm et (c) un parallélépipède de 25 cm x 25 cm x 10 cm [Paff2016].

Par ailleurs, les scintillateurs liquides sont inflammables et toxiques. Par exemple, le NE-213 (Nuclear Enterprises), le BC-501 (Saint-Gobain) ou le EJ-301 (Eljen Technologies) présentent des points éclair entre 24 °C et 26 °C. Récemment, Eljen Technologies a mis sur le marché sous la gamme EJ-309 un liquide scintillateur non toxique avec un point éclair à 144 °C, au prix d'une légère diminution du rendement de scintillation par rapport au modèle EJ-301 (75 % du rendement de l'antracène contre 78 % [EJ-301-309] [Bourne2016_a]) et des performances de PSD (facteur de mérite de 1.35 contre 1.55 à 200 keV [Cester2014]). Saint-Gobain a également commercialisé un nouveau scintillateur liquide, le BC-519, avec un point éclair à 74 °C et un rendement de scintillation égal à 60 % de celui de l'antracène, contre 80 % pour le BC-501 [Saint-Gobain]. Ces nouveaux scintillateurs liquides, qui répondent mieux aux exigences de sécurité, ont été utilisés, par exemple, dans un dispositif baptisé « *Fast Neutron Multiplicity Counter* » (FNMC) en remplacement des actuels ENMC et HLNCC pour caractériser des petits conteneurs de matières nucléaires [Dolan2014] [Chichester2015], voir Figure 12.

(a)



(b)

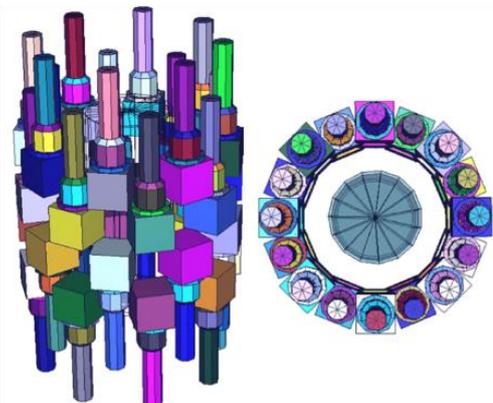


Figure 12. (a) Le dispositif « Fast Neutron Multiplicity Counter » avec 16 scintillateurs liquides EJ-309 orthocylindriques 3" x 3" (Ø 7.62 cm x L 7.62 cm) [Dolan2014] ; (b) Modélisation MCNP pour un dispositif de 32 détecteurs cubiques EJ-309 (7.62 x 7.62 x 7.62 cm³) [Chichester2015].

Après discrimination neutron-gamma, les paires de neutrons sont détectées dans des fenêtres de coïncidence de l'ordre de 50 à 100 ns [Henzlova2015]. Ce système a démontré une capacité à caractériser des échantillons de plutonium sous formes métallique ou oxyde avec un écart-type de moins de 5 % pour des acquisitions de l'ordre de la minute [Dolan2014]. Les performances du système simulé ont été évaluées en comparaison avec le HLNCC/JCC-31 à base de compteurs hélium 3 commercialisé par Mirion Technologies [Mirion_JCC31], voir Tableau 5.

Tableau 5. Comparaison des performances simulées du FNMC (scintillateurs organiques liquides) avec celles du dispositif JCC-31 (compteurs à hélium 3) commercialisé par Mirion Technologies [Chichester2015] [Mirion_JCC31].

Paramètres du système	FNMC	HLNCC JCC-31
Dimensions	Ø 45.2 cm x L 57.6 cm	Ø 17 cm x L 41 cm
Efficacité neutronique de détection (ϵ)	9.3%	17.8%
Temps de détection moyen des neutrons	5.9 ns	42 μ s
Taille de la fenêtre de coïncidence	30 ns	64 μ s

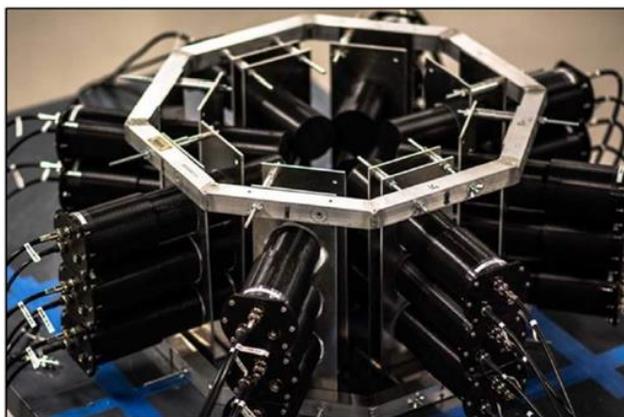
Bien que son efficacité de détection soit moindre, le FNMC est beaucoup plus rapide, ce qui permet de limiter drastiquement les coïncidences accidentelles. Cependant, la qualité de la discrimination neutron-gamma est supposée ici parfaite, alors qu'en pratique l'ordre de grandeur de la fraction résiduelle de rayonnements gamma dans les impulsions identifiées comme neutroniques est de 10^{-3} [Chichester2015], à comparer au rejet des rayonnements gamma par un simple seuil en amplitude avec des compteurs à hélium 3, de l'ordre de 10^{-7} à 10 mRad/h [Kouzes2010]). Par ailleurs, la Figure 12 montre que la couverture géométrique est loin d'être totale et de ce fait l'efficacité de détection est nettement inférieure à celle du JCC-31, limitant significativement la statistique de comptage en comptage des multiplicités. L'ajout de détecteurs supplémentaires avec leurs voies électroniques pour atteindre une efficacité similaire au JCC-31 augmenterait de manière prohibitive le coût du dispositif [Chichester2015].

3.3.3 Les scintillateurs à base de cristaux organiques

Les scintillateurs cristallins historiques à base de trans-stilbène ($C_{14}H_{12}$) présentent d'excellentes performances pour la discrimination neutron-gamma [Galunov2006] [Zaitseva2015] et sont utilisés notamment en spectrométrie neutronique, mais ils sont limités à de petits volumes de détection. La croissance de ces cristaux s'effectue par la méthode « Bridgman » [Arulchakkaravarthi2001] qui permet de tirer des cristaux d'au plus 6 à 8 centimètres [Budakovsky2007], ou plus récemment par croissance en solution pour obtenir jusqu'à 10 centimètres de cristaux, de manière moins coûteuse et plus fiable [Carman2013].

Une étude a démontré la faisabilité d'un dispositif de comptage des multiplicités pour des échantillons de matières nucléaires, similaire au FNMC de la Figure 12 mais avec des scintillateurs au stilbène, voir Figure 13 (a) [Shin2018]. Ce système, équipé de numériseurs d'impulsions V1730 de la société CAEN [CAEN_V1730], est capable de traiter jusqu'à 1.6×10^5 impulsions par seconde et par détecteur, soit $3.8 \times 10^6 s^{-1}$ au total avec un temps mort annoncé comme négligeable et une PSD qui permet de séparer nettement les neutrons et rayonnements gamma (respectivement en dessous et au-dessus de la en ligne noire en Figure 13 (b)) jusqu'à des seuils énergétiques très faibles, inférieurs à 100 keVee [Shin2018].

(a)



(b)

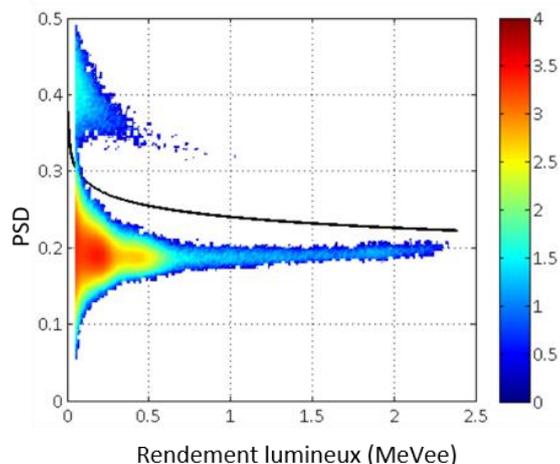


Figure 13. (a) FNMC composé de 24 scintillateurs stilbène ortho-cylindriques 2"x2" (Ø 5.08 cm x L 5.08 cm) et (b) histogramme de PSD obtenu pour une mesure d'une source de californium 252 [Shin2018].

Les scintillateurs à cristaux organiques ont des capacités de séparation neutron-gamma supérieures aux scintillateurs liquides, même à fort taux de comptage (rejet des rayonnements gamma de l'ordre de 3.10^{-6} pour des

taux de comptages de 10^5 s^{-1} par détecteur [Bourne2016_b]) et à bas seuils [Langeveld2020]. Les incertitudes statistiques pour des mesures d'échantillons de plutonium peuvent même être inférieures à celles obtenues avec des systèmes à compteurs hélium 3 pour des temps de mesure équivalents [DiFulvio2017]. Malgré ces nombreux avantages, ils n'excèdent pas 10 cm dans leur plus grande dimension et ne peuvent pas être envisagés en caractérisation des colis de déchets radioactifs, sauf à utiliser un très grand nombre de détecteurs et de voies électronique, rendant le coût global du système de mesure prohibitif.

3.3.4 Les scintillateurs à base de verres organiques

Les capacités de scintillation des verres organiques et leur potentielle utilisation pour la détection des neutrons sont connues depuis longtemps [Downs1958] mais ils n'ont jusqu'à présent pas pu être considérés comme industrialisables, notamment en raison de leur très petite taille, de leur instabilité à température ambiante, et de leur difficulté de fabrication. [Shin2019].

Les récentes avancées ont permis de développer de nouveaux scintillateurs en verre organique non-cristallin, solide et stable, à l'aide d'une méthode de fabrication peu coûteuse et rapide [Shin2019], et surtout de réaliser des volumes de l'ordre de plusieurs dizaines de cm^3 [Carlson2017] [Ku2018]. Avec l'incorporation d'un fluorophore qui confère une capacité de PSD, ces nouveaux scintillateurs sont capables de réunir les points forts des scintillateurs cristallins, d'une part, et ceux des scintillateurs liquides et plastiques, d'autre part [Carlson2016] [Carlson2017].

Les premières études de ce nouveau matériau montrent que son efficacité de détection neutronique est meilleure que celle d'un scintillateur stillbène, malgré une densité plus faible (1.096 g.cm^{-3} contre 1.160 g.cm^{-3}), grâce à un meilleur rendement de scintillation qui le rend sensible à une proportion plus importante de neutrons de basse énergie [Carlson2016] [Carlson2017]. Le facteur de mérite de la PSD est également le meilleur de toutes les technologies de scintillation, sur l'ensemble de la gamme énergétique, pour des volumes de 1 cm^3 [Carlson2017]. Des études plus récentes avec des volumes de détection plus importants ($\varnothing 5.08 \text{ cm} \times \text{L } 5.08 \text{ cm}$) ont confirmé les meilleurs rendements de scintillation (16% supérieur à celui du stillbène à 478 keV) mais les facteurs de mérite de la PSD sont plus faibles dans le cas des scintillateurs verres que pour les stillbènes [Shin2019].

Les scintillateurs en verre organique sont de bons candidats pour la mesure des neutrons rapides. Cependant, leur volume reste encore très faible et il faudrait un nombre très important de tels détecteurs pour mesurer des colis de déchets radioactifs par comptage des coïncidences et des multiplicités neutroniques.

3.3.5 Les scintillateurs organiques plastiques

Les scintillateurs au plastique PVT (polyvinyle toluène) non dopé par un absorbant neutronique sont couramment employés en raison de leur faible coût, soit comme détecteurs de rayonnements gamma [Ihandola2018], soit pour détecter les neutrons rapides via les protons de recul dus aux diffusions élastiques sur les noyaux d'hydrogène, sans nécessité de thermalisation comme pour les compteurs à hélium 3 ou au bore 10. Ceci leur confère un temps de détection moyen des neutrons environ trois ordres de grandeurs inférieur aux systèmes à base de compteurs à hélium 3, c'est-à-dire quelques dizaines de nanosecondes contre quelques dizaines de microsecondes. Ces durées de détection correspondent principalement au temps de vol des particules jusqu'aux détecteurs, avec des vitesses de l'ordre de quelques cm.ns^{-1} pour les neutrons rapides de fission ou de réactions (α, n) à 30 cm.ns^{-1} pour les rayonnements gamma, la réponse des scintillateurs étant ensuite de l'ordre de la nanoseconde (temps de montée des impulsions, qui permet d'obtenir des résolutions temporelles de l'ordre de la nanoseconde sur le temps de vol). Le temps de réponse des compteurs gazeux à hélium 3 est beaucoup plus long, de l'ordre de la microseconde, mais reste négligeable devant le temps de thermalisation des neutrons à détecter, qui est de plusieurs dizaines de microsecondes. Comme signalé plus haut, la principale conséquence est de pouvoir utiliser une fenêtre de coïncidence beaucoup plus courte avec les scintillateurs organiques et ainsi de réduire drastiquement la probabilité d'enregistrer des coïncidences accidentelles. La Figure 14 compare de façon qualitative (mesures avec des sources et géométries différentes) cette différence importante des temps de coïncidence avec des détecteurs hélium 3 et des scintillateurs au plastique PVT.

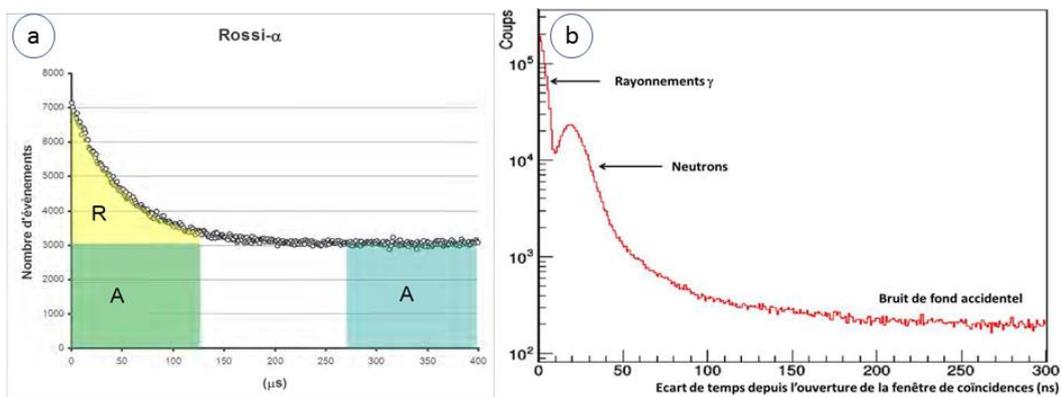
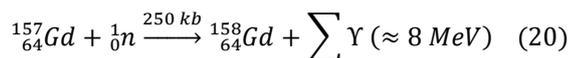


Figure 14. Courbes de Rossi-alpha pour une source de californium 252 mesurée avec un système de compteurs à hélium 3 (a) [Porcher2013] et avec un système de scintillateurs PVT (b) [Simony2017_b].

La Figure 14 illustre également le fait que les scintillateurs PVT présentent une sensibilité importante aux rayonnements gamma, qu'il est nécessaire de prendre en compte pour les mesures neutroniques de caractérisation des déchets. La PSD a été étudiée en laboratoire avec divers plastiques spéciaux, comme nous le verrons plus bas, mais la différence de forme des impulsions induites par les neutrons et rayonnements gamma est moins marquée qu'avec les scintillateurs organiques liquides. D'autres approches consistent à utiliser des scintillateurs au plastique PVT simple mais avec des convertisseurs externes neutron-gamma, comme le cadmium ou le gadolinium. Par exemple, un dispositif proposé par De Vita et al. [DeVita2016] [Fanchini2016] intercale de fines couches de gadolinium entre les scintillateurs PVT pour réaliser des captures neutroniques générant des gerbes gamma, selon l'équation (20) [Fanchini2016], dont l'énergie totale ($E_{\gamma_{tot}} \approx 8 \text{ MeV}$) est très supérieure à celle des rayonnements gamma du bruit de fond, notamment la raie à 2614 keV du ^{208}Tl [Ihandola2018]. Une discrimination énergétique est alors possible avec un seuil de coupure bas à 3 MeV, au-delà duquel le seul bruit de fond naturel provient du rayonnement cosmique [Holm2013], principalement les muons mais l'énergie déposée très élevée permet d'envisager un seuil de coupure haut vers 9 MeV [DeStefano2020].



Ces méthodes à base de scintillateurs PVT enveloppés de cadmium ou de gadolinium présentent des performances suffisantes dans le cadre des portiques radiologiques de contrôle (RPM, Radiation Portal Monitors) pour les sites sensibles (centres nucléaires, ports maritimes, etc.). Cependant, elles sont trop lentes, en raison de la nécessaire thermalisation des neutrons avant capture par le Cd ou Gd, ou insuffisamment efficaces pour les mesures des coïncidences et des multiplicités où il est primordial de maintenir une efficacité de détection élevée. Or, dans ces dispositifs, chaque diffusion neutronique élastique ne donne pas nécessairement lieu à une capture du neutron diffusé dans le Cd ou le Gd. Ces méthodes permettent la mise en évidence d'événements neutroniques, ce qui est l'objectif pour les portiques de sécurité qui visent à déclencher une alarme quand ce type d'événements se produit, signalant la présence d'une menace de type « nucléaire » au-delà des alarmes « radiologiques » dues à des sources purement gamma. Cependant, elles ne sont pas adaptées à la détection du plus grand nombre possible de coïncidences de fission dans les contrôles des matières nucléaires ou la caractérisation des déchets radioactifs.

Comme signalé plus haut, la PSD avec des scintillateurs plastiques spéciaux est étudiée depuis longtemps [Brooks1960] mais les premières formulations chimiques stables sont issues de travaux récents avec l'augmentation de la concentration d'un colorant scintillant (le 2,5-diphenyloxazole, ou PPO) au sein d'une matrice organique de polyvinyle-toluène [Zaitseva2012]. Ce scintillateur a été commercialisé par Eljen Technologies sous l'appellation EJ-299 [EJ-299], puis amélioré avec le EJ-276 [EJ-276] grâce à l'addition d'un colorant secondaire qui stimule la scintillation et les performances de PSD [Zaitseva2018]. Ces nouveaux scintillateurs ont fait l'objet de nombreuses études comparatives avec des scintillateurs organiques liquides de référence (cf. §3.3.2). Ils apparaissent moins performants à tous points de vue, en termes de rendement lumineux (58% de l'anthracène contre 78% et 75% pour les liquides EJ-301 et EJ309, respectivement [EJ-301-309] [Lawrence2014] [Woolf2015]), de sensibilité aux neutrons [Pozzi2013], et de facteur de mérite de la PSD tel que présenté dans le Tableau 6 [Pozzi2013] [Cester2014]. Ce tableau montre que les capacités de discrimination des scintillateurs plastiques EJ-299 sont nettement moins bonnes que celles des scintillateurs liquides, même à haute énergie. De plus, en dessous de 500 keVee, la différenciation neutron-gamma est très mauvaise, or ce seuil correspond à des neutrons de 2.5 MeV [Lawrence2014] car les scintillateurs organiques ont un rendement de scintillation plus faible pour les protons (détection des neutrons) que pour les électrons (rayonnements gamma).

Tableau 6. Facteurs de mérite de la PSD pour le scintillateur plastique EJ-299-33 et les scintillateurs liquides EJ-309 et EJ-301. Ces scintillateurs cylindriques ($\varnothing 5.08 \text{ cm} \times L 5.08 \text{ cm}$) sont équipés de tubes photomultiplicateurs Electron Tubes Limited ETL 9214B [Pozzi2013] ou Hamamatsu H1949-51 [Cester2014].

Seuil bas	FOM EJ-299-33	FOM EJ-309	FOM EJ-301
120 keVee [Pozzi2013]	0.82	1.43	-
180 keVee [Pozzi2013]	0.96	1.54	-
200 keVee [Cester2014]	0.8	1.35	1.55
400 keVee [Cester2014]	1	1.65	1.80
600 keVee [Cester2014]	1.15	1.8	1.9
800 keVee [Cester2014]	1.2	1.85	2

D'autres scintillateurs plastique en polystyrène ont montré des rendements de scintillation supérieurs à ceux des liquides (85% de l'anthracène) [vanLoef2012], avec des performances de PSD intéressantes à 1 MeVee (FoM de

2.3 pour des volumes de 5.08 cm × 5.08 cm [vanLoef2012], puis FoM de 2.4 pour des volumes de 16 cm × 13.5 cm × 7.6 cm grâce à d'autres algorithmes de PSD [Langeveld2017] [Shirwadkar2020]). Cependant, en considérant un seuil de PSD de 120 keVee plus réaliste pour la détection des neutrons de fission (soit une coupure neutronique vers 1 MeV), cette FoM descend à 0.86 [Shirwadkar2013], ce qui reste insuffisant. Des analyses bidimensionnelles (PSD vs. temps de vol) ont été suggérées pour améliorer la qualité de la discrimination dans les études à venir [Roy2018] [Marchi2019] mais les scintillateurs plastiques à capacité de PSD ne constituent pas, à l'heure actuelle, une alternative viable aux compteurs à hélium 3 pour la caractérisation des déchets radioactifs.

Enfin, d'autres études ont été menées sur le dopage des scintillateurs au lithium 6 [Zaitseva2013], ou bien au bore 10 [Pawelczak2014]. Le dopage engendre cependant un coût supplémentaire significatif pour un scintillateur de volume de détection donné, ainsi que des risques de vieillissement accéléré et donc un manque de fiabilité sur le long terme. Il induit également des temps de réponse plus lents pour l'information en provenance des neutrons, qu'il est nécessaire de thermaliser pour favoriser leur capture. Ces systèmes de détection sont donc bien plus sensibles aux coïncidences accidentelles. Cette technologie n'est donc pas envisageable pour la caractérisation des colis de déchets radioactifs.

3.4 CHOIX DES SCINTILLATEURS AU PVT POUR LA CARACTERISATION DES COLIS DE DECHETS

Les détecteurs gazeux envisagés comme alternative de remplacement direct des compteurs à hélium 3 montrent toutes des limitations, soit en termes d'efficacité de détection (compteurs à dépôts de bore) soit en raison de leur toxicité (compteurs BF₃). Les scintillateurs présentent un avantage certain qui est leur rapidité de réponse permettant une réduction drastique des coïncidences accidentelles. Leur sensibilité aux rayonnements gamma constitue cependant un inconvénient majeur en mesure neutronique, qui nécessite de mettre en œuvre des méthodes de discrimination neutron-gamma comme la PSD qui, on l'a vu, n'est pas applicable à la caractérisation de colis de déchets radioactifs de grand volume (100 litres et au-delà), du moins à un coût compétitif par rapport aux compteurs à hélium 3. L'objectif de cette thèse est d'utiliser de simples plastiques scintillateurs en PVT, sans capacité de PSD, qui permettraient de réduire le coût du système de mesure d'un facteur 5 à 10 par rapport aux compteurs à hélium 3.

Le challenge consiste donc à pallier leur forte sensibilité aux rayonnements gamma et à limiter le phénomène de diaphonie dû aux diffusions neutroniques ou gamma entre détecteurs voisins, explicité ci-après au §4.3. Pour atteindre ces objectifs, le temps de détection très court de ces scintillateurs est un avantage crucial par rapport aux détecteurs gazeux à hélium 3, non seulement pour réduire fortement les coïncidences accidentelles mais aussi pour réaliser une discrimination des coïncidences basée sur le temps de vol des particules.

Les paragraphes suivants présentent les travaux réalisés en amont de cette thèse [Deyglun2014_a] [Deyglun2014_b] [Deyglun2015] [Simony2016] [Simony2017_a] [Simony2017_b] pour étudier la faisabilité de la mesure neutronique passive des déchets plutonifères avec des scintillateurs PVT. Les limites et les perspectives dégagées lors de ces travaux seront mises en avant pour positionner les nouveaux axes de recherche de la présente thèse.

4. TRAVAUX ANTERIEURS LIES DIRECTEMENT A LA THESE

4.1 METHODE DE DENOMBREMENT DES MULTIPLICITES

Depuis une dizaine d'années, le Laboratoire de Mesures Nucléaires (LMN) du CEA de Cadarache étudie la caractérisation des matières nucléaires à l'aide de plastiques scintillateurs au PVT, d'abord dans le domaine de la sécurité [Deyglun2014_a] puis pour la caractérisation du plutonium dans les colis de déchets radioactifs avec la mesure neutronique passive des coïncidences de fission spontanée [Simony2017_b]. L'idée principale pour contrer leur sensibilité aux rayonnements gamma, qui génèrent de nombreuses coïncidences accidentelles et des coïncidences réelles parasites (par diaphonie, cascades de rayonnements gamma de désintégration ou de capture radiative (n,γ), rayonnements gamma de diffusion inélastique ($n,n'\gamma$) ou émis lors de réactions (α,n), etc.), est d'exploiter les ordres élevés des multiplicités qui concernent majoritairement les fissions (corrélation de nombreuses particules, typiquement 2.16 neutrons et 8.2 rayonnements gamma en moyenne par fission spontanée du plutonium 240 [Ensslin1991_11] [Oberstedt2017]). Le comptage des multiplicités d'ordre 2 et 3 (respectivement 3 et 4 impulsions coïncidentes), voire au-delà, permet ainsi de différencier les coïncidences utiles de fission spontanée des coïncidences parasites. Pour obtenir une statistique de comptage suffisante, une couverture géométrique importante du colis à mesurer avec des scintillateurs PVT d'efficacité intrinsèque élevée est nécessaire [Simony2016] [Simony2017_a] [Simony2017_b], avec une électronique adaptée aux forts taux de comptage (temps mort limité) et permettant de dater très précisément les impulsions des scintillateurs (résolution de l'ordre de la nanoseconde).

Une méthode simple de comptage des coïncidences a été employée dans le cadre des travaux antérieurs de [Deyglun2014_a] [Deyglun2014_b] [Deyglun2015] [Simony2016] [Simony2017_a] [Simony2017_b] comme illustré en Figure 15. A la différence de la méthode du registre à décalage (Figure 3), une impulsion qui a été compté au sein d'une fenêtre de coïncidence n'ouvre pas à son tour de fenêtre de coïncidence. Cette façon simple de

dénombrer les coïncidences fait cependant perdre une partie de l'information et réduit la statistique de comptage, mais aussi elle ne permet pas de bénéficier des travaux antérieurs sur les registres à décalage pour déconvoluer les coïncidences réelles (doublets, triplets, etc.) des accidentelles [Ensslin1991_11] [Ensslin1998].

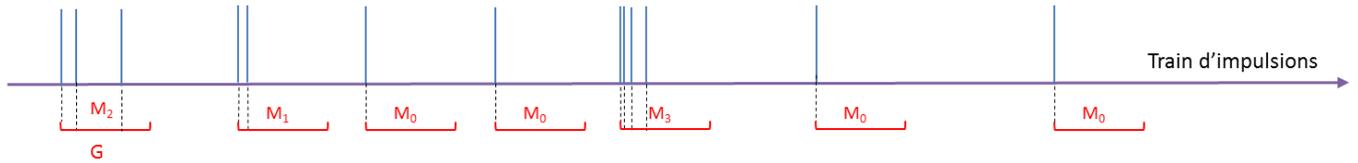


Figure 15. Méthode de comptage des multiplicités employée au cours des études réalisées par Simony et al. [Simony2016] [Simony2017_b].

4.2 DISPOSITIF EXPERIMENTAL ET SIMULATIONS

Le dimensionnement d'un poste de mesure pour colis de déchets de 118 litres a été réalisé à l'aide du code de calcul MCNPX-PoliMi, qui est une extension du code MCNPX développée à l'Université du Michigan et à l'Institut Polytechnique de Milan (la version 1 du code a été développée au *Politecnico di Milano*, d'où le nom du code). MCNPX-PoliMi permet de suivre individuellement le parcours des particules issues notamment de sources corrélées (de fissions, réactions (α, n), cascades gamma comme le ^{60}Co , etc.) et de simuler leurs dépôts d'énergies dans les scintillateurs avec prise en compte des corrélations et des multiplicités [Pozzi2003], notamment pour les contrôles de matières nucléaires [Pozzi2012]. Un exemple de fichier de sortie de MCNP-PoliMi, aussi appelé « fichier de collision », est présenté dans la Figure 16 suivante :

①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	⑧											
1	10	2	1	6	105	0.112157	0.16	-1.91	-39.93	74.58	1.000E+00	0	0	0	3.468E-01			
1	10	2	1	6	105	0.037125	0.17	-0.62	-39.29	77.65	1.000E+00	0	1	0	2.347E-01			
1	10	2	1	6	105	0.050590	0.20	-1.87	-44.88	85.95	1.000E+00	0	2	0	1.975E-01			
1	10	2	1	6	105	0.048457	0.21	-3.49	-43.91	86.63	1.000E+00	0	3	0	1.470E-01			
2	8	2	1	6	105	1.897426	0.17	0.37	-39.59	17.28	1.000E+00	0	0	0	2.728E+00			
2	8	2	1	6	105	0.140820	0.19	2.04	-39.46	13.06	1.000E+00	0	1	0	8.305E-01			
2	8	2	1	6	105	0.004144	0.20	2.64	-38.07	10.71	1.000E+00	0	2	0	6.897E-01			
3	9	1	-99	6000	105	0.532750	2.02	1.28	-39.07	62.18	1.000E+00	0	0	0	2.150E+00			
3	5	2	1	6	104	0.022829	0.45	32.97	-30.14	39.57	1.000E+00	0	1	0	1.716E-01			
3	5	2	1	6	104	0.052137	0.48	25.67	-32.56	38.63	1.000E+00	0	2	0	1.488E-01			
3	5	2	1	6	104	0.021208	0.48	25.85	-32.53	38.76	1.000E+00	0	3	0	9.663E-02			
3	5	2	1	1	104	0.006945	0.48	25.86	-32.51	38.66	1.000E+00	0	4	0	7.543E-02			
3	5	2	1	6	105	0.010288	0.58	-1.82	-37.01	24.75	1.000E+00	0	5	0	6.848E-02			
3	5	2	1	1	105	0.007904	0.59	-0.55	-37.94	23.83	1.000E+00	0	6	0	5.819E-02			
3	5	2	1	6	105	0.001224	0.59	-0.59	-38.25	24.98	1.000E+00	0	7	0	5.029E-02			
3	5	2	1	6	105	0.007264	0.60	-0.88	-38.07	25.49	1.000E+00	0	8	0	4.907E-02			
3	5	2	1	6	105	0.005572	0.60	-0.95	-38.16	24.83	1.000E+00	0	9	0	4.180E-02			
3	5	2	1	6	105	0.001156	0.60	-0.76	-37.77	25.40	1.000E+00	0	10	0	3.623E-02			
3	5	2	1	6	105	0.003461	0.61	-0.66	-36.19	25.33	1.000E+00	0	11	0	3.507E-02			
3	5	2	0	6	105	0.031612	0.61	-0.81	-36.29	25.34	1.000E+00	0	12	0	3.161E-02			
3	3	2	1	6	101	0.011252	0.13	2.95	38.16	58.38	1.000E+00	0	0	0	2.528E-01			
3	3	2	1	6	101	0.021087	0.16	0.74	44.58	61.41	1.000E+00	0	1	0	2.415E-01			
4	12	1	-99	1001	102	0.063343	3.95	29.01	24.76	30.20	1.000E+00	0	0	0	6.199E-01			
4	12	1	-99	1001	102	0.486717	4.02	29.69	25.05	29.96	1.000E+00	0	1	0	5.564E-01			
4	12	1	-99	6000	103	0.013662	13.59	44.46	3.97	6.48	1.000E+00	0	3	0	6.898E-02			
4	12	1	-99	1001	103	0.013127	14.29	42.42	3.49	5.61	1.000E+00	0	4	0	5.527E-02			
4	12	1	-99	1001	103	0.016019	14.82	41.53	3.10	4.44	1.000E+00	0	5	0	4.218E-02			
4	12	1	-99	6000	103	0.001694	14.98	41.50	2.85	4.18	1.000E+00	0	6	0	2.620E-02			
4	12	1	-99	1001	103	0.010323	15.91	41.36	0.86	4.39	1.000E+00	0	7	0	2.454E-02			
4	12	1	-99	1001	103	0.009845	16.27	41.70	0.38	4.36	1.000E+00	0	8	0	1.421E-02			
4	12	1	-99	1001	103	0.004150	16.56	41.79	0.25	4.57	1.000E+00	0	9	0	4.361E-03			
4	10	1	-99	1001	102	1.650914	2.27	26.59	28.99	68.92	1.000E+00	0	0	0	1.941E+00			
4	10	1	-99	1001	102	0.060958	2.44	25.95	30.04	69.38	1.000E+00	0	1	0	2.902E-01			
4	10	1	-99	1001	102	0.134737	2.45	25.94	30.04	69.38	1.000E+00	0	2	0	2.291E-01			
4	10	1	-99	1001	102	0.049020	2.55	25.83	30.08	69.82	1.000E+00	0	3	0	9.432E-02			
4	10	1	-99	1001	102	0.017054	2.56	25.83	30.07	69.84	1.000E+00	0	4	0	4.534E-02			
4	10	1	-99	1001	102	0.002551	3.03	25.41	29.24	70.38	1.000E+00	0	5	0	2.826E-02			
4	10	1	-99	1001	102	0.004526	3.66	24.70	28.07	70.71	1.000E+00	0	6	0	2.561E-02			
4	10	1	-99	1001	102	0.015195	4.65	23.06	27.01	71.10	1.000E+00	0	7	0	2.112E-02			
4	10	1	-99	6000	104	0.001398	54.48	24.30	-25.97	75.23	1.000E+00	0	8	0	5.946E-03			
4	10	1	-99	1001	104	0.004320	54.92	24.48	-25.70	75.49	1.000E+00	0	9	0	4.547E-03			

- ① n° histoire
- ② n° particule
- ③ nature de la particule
- ④ type d'interaction
- ⑤ noyau cible
- ⑥ détecteur cible
- ⑦ énergie déposée (MeVee)
- ⑧ Δt (en shakes)

Figure 16. Exemple d'un fichier de collision obtenu en sortie de simulation avec le logiciel MCNPX-PoliMi. (1 shake = 10 ns).

Ce fichier retrace l'historique des interactions qui ont eu lieu dans l'ensemble des volumes de détection considérés. Des informations essentielles telles que la nature de la particule (3), le type d'interaction (4), le noyau cible de l'interaction (5), le détecteur concerné (6) et l'énergie déposée (7) permettent de reconstituer la réponse des détecteurs à l'aide d'un code d'analyse en post-traitement. Les informations sur le temps écoulé depuis l'instant t où une histoire (c'est-à-dire un évènement, par ex. une fission spontanée) a été générée (8), le numéro de l'évènement (1) et le numéro de la particule (2) permettent de réaliser l'analyse des coïncidences dans le jeu de données simulées.

Le dispositif simulé, destiné à des fûts de 118 litres, comprend une couverture totale du colis, voisine de 4π , avec une vingtaine de scintillateurs PVT de 10 cm d'épaisseur [Simony2016] [Simony2017_b]. Une maquette expérimentale a été réalisée pour valider les résultats de simulation, voir Figure 17. Elle comprend 8 scintillateurs EJ-200 de dimensions $10 \times 10 \times 10 \text{ cm}^3$ couplés à des PMT 3M-P-E1-x-N de la société Electron Tubes [EJ-200] [Electron_Tubes] et un fût maquette cylindrique de 118 litres, de 46 cm de diamètre et 72 cm de hauteur. Chaque scintillateur est écranté par des briques plomb de 5 cm d'épaisseur pour limiter la contribution des rayonnements gamma. Le numériseur utilisé est un module DT5730B de la société CAEN [DT5730], avec 8 voies de numérisation sur 14 bits à une fréquence d'échantillonnage de 500 MHz (i.e. toutes les 2 ns).

Des essais ont été réalisés sans fût et avec le fût vide pour caractériser l'efficacité du système de détection, puis avec deux matrices, l'une métallique et l'autre organique (bois), dont les caractéristiques sont données dans le

Tableau 7 et qui représentent deux types de fûts de déchets technologiques, l'un où les rayonnements gamma sont fortement atténués (matrice métallique) et l'autre où les neutrons peuvent se thermaliser et devenir indétectables par les scintillateurs PVT (matrice organique).

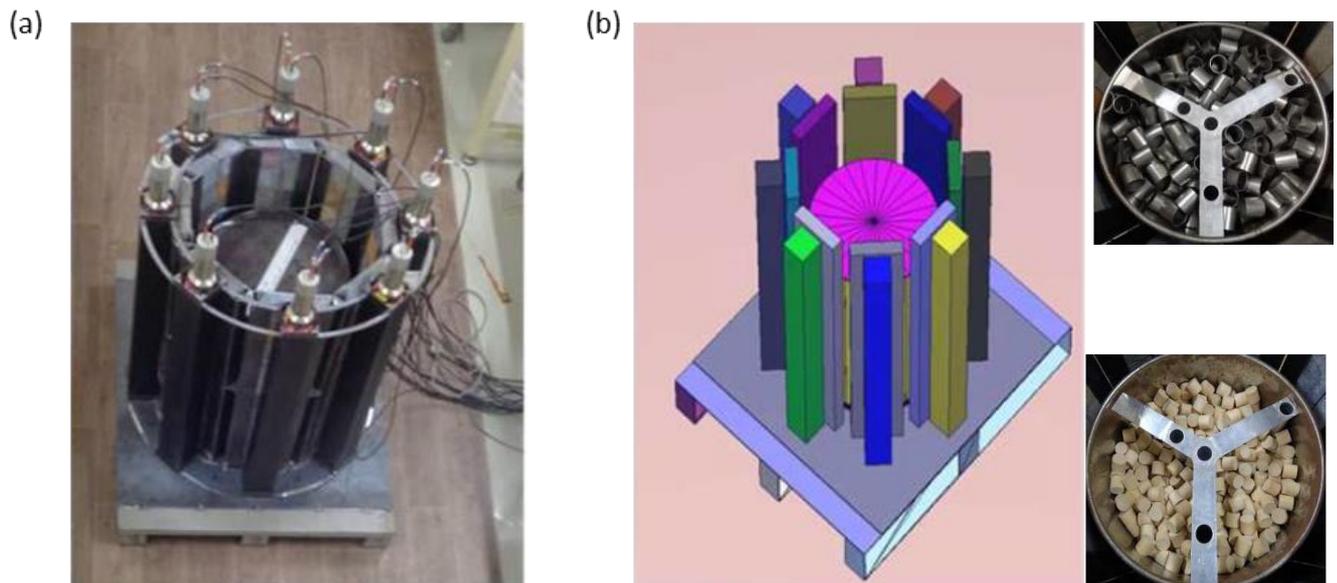
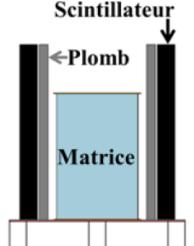


Figure 17. (a) Maquette du poste de mesure pour colis de déchets de 118 litres ; (b) modélisation MCNPX-PoliMi associée ; (c) matrices de remplissage en fer et bois et canaux pour placer les sources [Simony2017_b].

Tableau 7. Description des deux types de matrices étudiées expérimentalement dans la thèse [Simony2017_b].

			
	<p>Scintillateur</p> <p>← Plomb</p> <p>Matrice</p>	Matrice métallique	Matrice organique
Composition		Acier austénitique 18-8	Cellulose (C ₆ H ₁₀ O ₅)
Densité modélisée		0.66	0.33
Géométrie		Cylindre (Ø 46 cm, h 72 cm)	Cylindre (Ø 46 cm, h 61 cm)

Des simulations d'une source de californium 252 ont été réalisées pour déterminer l'efficacité neutronique de détection du système avec et sans matrice. Les résultats sont présentés dans le Tableau 8. Les efficacités de détection avec ce dispositif maquette à nombre de détecteurs limité sont a priori trop faibles pour permettre le comptage des multiplicités d'ordres supérieurs dans des temps de mesure compatibles avec une application industrielle, mais suffisants pour ces premières études de faisabilité. Le système complet simulé avec une couverture du fût proche de 4π stéradians (18 scintillateurs plastique de 20 cm × 10 cm × 83 cm) devrait atteindre 30 % d'efficacité de détection neutronique dans le cas d'une source nue, sans plomb devant les détecteurs ni fût maquette [Simony2017_b].

Tableau 8. Efficacités de détection calculées avec MCNPX-PoliMi pour une source de californium 252 placé au centre des détecteurs ou du fût maquette avec un seuil bas à 100 keVee [Simony2017_b].

Configuration géométrique		Neutrons source émis	Neutrons détectés (> 100 keVee)	Efficacité de détection (comptage total)
Source ponctuelle « nue » (sans fût maquette, sans plomb) au centre des détecteurs		375 700	40 658 ± 202	10.8 ± 0.05 %
Source ponctuelle au centre du fût maquette + 5 cm de plomb devant les détecteurs	Fût vide	375 700	30 266 ± 174	8.1 ± 0.06 %
	Matrice métallique	375 700	27 286 ± 165	7.3 ± 0.04 %
	Matrice organique	375 700	17 543 ± 132	4.7 ± 0.04 %

4.3 TRAITEMENT DE LA DIAPHONIE

Au-delà de la diaphonie électronique entre voies du système d'acquisition, qui sera étudiée lors de la présente thèse, la diaphonie physique due à la diffusion neutronique ou gamma correspond à la possibilité qu'une seule particule incidente génère plusieurs impulsions dans des détecteurs différents [Simony2016]. Ce phénomène est à l'origine de nombreuses coïncidences réelles parasites, susceptibles d'être confondues avec les coïncidences utiles de fission spontanée et donc de fausser l'estimation de la masse de matière nucléaire. De ce fait, il est important de limiter ce phénomène. La Figure 18 illustre des exemples de réactions susceptibles de générer de la diaphonie. Les diffusions neutroniques élastiques et inélastiques, les diffusions Compton des rayonnements gamma, sont les principales origines de la diaphonie. Elles peuvent générer des multiplicités d'ordre 1 (2 impulsions en coïncidence) telles que celles représentées en Figure 18, mais aussi des multiplicités d'ordre supérieur par diffusions multiples, tant que les dépôts énergétiques restent supérieurs au seuil de coupure de 100 keVee. Une des stratégies pour contrer la diaphonie consiste à paralyser, en post-traitement du fichier d'acquisition (liste d'impulsions avec pour chacune leur numéro de détecteur, temps d'arrivée et charge intégrée), les détecteurs voisins du détecteur qui enregistre la 1^{ère} impulsion, tel que représenté en Figure 18.

Pour paramétrer l'intervalle de temps de paralysie optimal de rejet des évènements de diaphonie tout en limitant le rejet de coïncidences réelles utiles de fission spontanée, une étude de temps de vol entre les interactions de diaphonie a été réalisée par simulation [Simony2016]. Une paralysie des détecteurs voisins dans les 10 ns qui suivent la 1^{ère} impulsion a été retenue [Simony2016] [Simony2017_b].

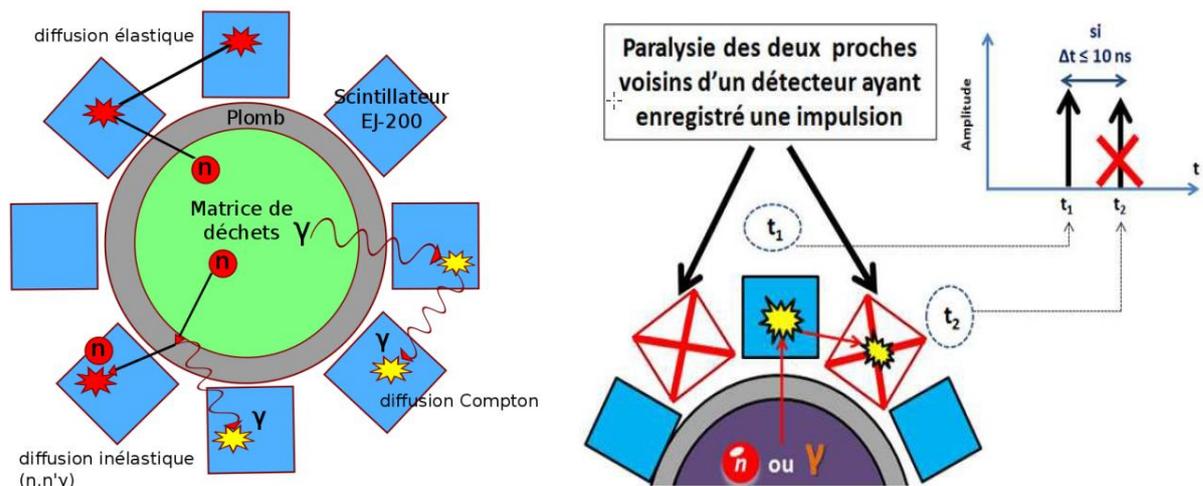


Figure 18. Illustration du phénomène de diaphonie entre scintillateurs plastiques et d'une méthode de limitation de cet effet [Simony2017_b].

4.4 RESULTATS ET LIMITES IDENTIFIEES

Les résultats donnés dans le Tableau 9 ont été obtenus avec une source neutronique « utile » de fissions spontanées, le californium 252, et une source « parasite » de type (α,n), l'AmBe, qui présentent un ratio alpha proche de 1 (rapport entre les taux d'émission neutronique des réactions (α,n) et des fissions spontanées, cf. § 2.1.1). La source de ²⁵²Cf et la durée d'acquisition sont équivalentes à la mesure de 1 g de plutonium 240 pendant 4000 s [Simony2017_b].

Tableau 9. Comptages des multiplicités pour une mesure de bruit de fond et des mesures des sources de californium 252 et d'américium-béryllium avec rejet de la diaphonie par paralysie des détecteurs voisins pendant 10 ns et un seuil en énergie de 100 keVee [Simony2017_b].

	 Matrice métallique		 Matrice organique		Bruit de fond
Multiplicité	²⁵² Cf	AmBe	²⁵² Cf	AmBe	
M0	199 220 ± 777	312 975 ± 655	178 978 ± 802	264 874 ± 627	231 875 ± 482
M1	20 005 ± 146	6 149 ± 81	8 334 ± 98	4 642 ± 71	632 ± 25
M2	1 084 ± 34	41 ± 7	300 ± 19	31 ± 7	30 ± 5
M3	29 ± 6	1 ± 2	12 ± 4	0 ± 1	4 ± 2
M4	0 ± 2	1 ± 1	-1 ± 2(1)	1 ± 1	0 ± 1
M5	0 ± 0	0 ± 0	0 ± 0	0 ± 0	0 ± 0

(1) Des comptages négatifs peuvent apparaître car tous les comptages sont nets de bruit de fond

A nombre de neutrons émis quasiment identique, la source AmBe génère des multiplicités d'ordre 1 (M1, paires d'impulsions) en nombre seulement 2 à 3 fois inférieur à celles de la source de californium-252, selon la matrice. En effet, les réactions ${}^9\text{Be}(\alpha, n){}^{12}\text{C}$ de l'AmBe génèrent, dans 57 % des cas, l'émission d'un rayonnement gamma de désexcitation à 4.4 MeV du noyau résiduel ${}^{12}\text{C}$ [Liu2007] qui est corrélé avec le neutron émis. Après rejet de la diaphonie, les coïncidences entre le neutron et ce rayonnement gamma corrélés sont prépondérantes dans les multiplicités d'ordre 1 pour l'AmBe. A partir de l'ordre 2 (M2), la source de ${}^{252}\text{Cf}$ génère par contre 10 à 25 fois plus de coïncidences que celle d'AmBe, selon la matrice considérée. A partir d'une multiplicité M3, les statistiques de comptages sont insuffisantes pour effectuer une comparaison quantitative.

Il est important de noter que la présence d'un seuil bas en énergie est capitale pour couper le bruit de fond gamma toujours très élevé à basse énergie, notamment ici les raies relativement intenses du ${}^{252}\text{Cf}$ jusqu'à 100 keV ou celle très intense de l'américium 241 à 59 keV [Laraweb], mais aussi plus généralement le bruit de fond gamma diffusé. Dans sa thèse, Benoît Simony s'est aussi intéressé aux limites de la méthode en présence de sources de rayonnements gamma d'énergie supérieure au seuil de coupure de 100 keV (qui ne peut pas être augmenté davantage sauf à perdre une grande partie du signal utile des neutrons de fission) ou de ratios alpha très supérieurs à 1. Certains déchets technologiques plutonifères issus de l'aval du cycle du combustible nucléaire sont en effet susceptibles de contenir des produits de fission (comme le ${}^{137}\text{Cs}$) ou d'activation (e.g. ${}^{60}\text{Co}$) générés en réacteurs, avec des raies gamma de forte intensité (respectivement 85 % pour la raie à 662 keV du césium 137 et quasiment 100 % pour chacun des deux rayonnements gamma corrélés du cobalt 60 à 1173 keV et 1332 keV). Des simulations pour l'étude de l'influence de ces rayonnements gamma intenses sur les comptages de multiplicités ont été réalisées en comparaison directe avec une simulation de plutonium 240, dans un dispositif couvrant totalement le fût de 118 litres [Simony2017_b]. Les résultats sont présentés dans les Tableau 10 et Tableau 11, dans le cas de la matrice organique (la moins pénalisante pour les rayonnements gamma mais la plus pénalisante pour les neutrons) et pour différentes épaisseurs d'écrans de plomb.

Tableau 10. Comparaison des résultats de simulation pour des sources ponctuelles centrées de césium 137 de 1.24 GBq et de plutonium 240 (100 g, 22 400 fissions par seconde), pour 8 s de mesure dans un dispositif de détection couvrant entièrement le fût de 118 litres, avec différentes épaisseurs de plomb, rejet de la diaphonie par paralysie des détecteurs voisins pendant 10 ns et une matrice bois de densité 0,2 [Simony2017_b].

Matrice bois	3 cm de Plomb		5 cm de Plomb		10 cm de Plomb	
	${}^{137}\text{Cs}$ 1.24 GBq	${}^{240}\text{Pu}$ 22 400 f.s ⁻¹	${}^{137}\text{Cs}$ 1.24 GBq	${}^{240}\text{Pu}$ 22 400 f.s ⁻¹	${}^{137}\text{Cs}$ 1.24 GBq	${}^{240}\text{Pu}$ 22 400 f.s ⁻¹
M0	16 921 423 ± 4 114	140 305 ± 375	6 863 685 ± 2 620	126 508 ± 356	23 648 ± 154	103 959 ± 322
M1	13 259 407 ± 3 641	24 806 ± 157	676 405 ± 822	15 404 ± 124	39 ± 6	8 159 ± 90
M2	4 736 133 ± 2 176	3 003 ± 55	31 782 ± 178	1 230 ± 35	-	336 ± 18
M3	1 026 838 ± 1 013	234 ± 15	981 ± 31	53 ± 7	-	11 ± 3
M4	151 269 ± 389	9 ± 3	12 ± 3	3 ± 2	-	-
M5	15 877 ± 126	2 ± 1	1 ± 1	-	-	-
M6	1 245 ± 35	-	-	-	-	-
M7	80 ± 9	-	-	-	-	-

Tableau 11. Comparaison des résultats de simulations pour des sources ponctuelles et centrées de cobalt-60 (10 MBq) et de plutonium-240 (100 grammes, 22 400 fissions par secondes), pour 15 secondes de mesure dans un dispositif de détection couvrant entièrement le fût de 118 litres, avec différentes épaisseurs de plomb, rejet de la diaphonie par paralysie des détecteurs voisins pendant 10 ns et une matrice bois de densité 0,2 [Simony2017_b].

Matrice bois	3 cm de Plomb		5 cm de Plomb		10 cm de Plomb	
	⁶⁰ Co 10 MBq	²⁴⁰ Pu 22 400 f.s ⁻¹	⁶⁰ Co 10 MBq	²⁴⁰ Pu 22 400 f.s ⁻¹	⁶⁰ Co 10 MBq	²⁴⁰ Pu 22 400 f.s ⁻¹
M0	15 210 998 ± 3 900	262 651 ± 512	5 736 818 ± 2 395	237 105 ± 487	297 508 ± 545	194 810 ± 441
M1	2 499 722 ± 1 581	46 713 ± 216	323 533 ± 569	28 945 ± 170	1 669 ± 41	15 180 ± 123
M2	259 228 ± 509	5 525 ± 74	11 808 ± 109	2 271 ± 48	7 ± 3	662 ± 26
M3	19 098 ± 138	424 ± 21	282 ± 6	101 ± 10	-	20 ± 4
M4	1 118 ± 33	21 ± 5	6 ± 2	6 ± 2	-	1 ± 1
M5	50 ± 7	2 ± 1	-	-	-	-
M6	2 ± 1	-	-	-	-	-
M7	-	-	-	-	-	-

Ces résultats montrent que l'influence d'une source de rayonnements gamma non corrélés mais de forte activité (césium 137) est extrêmement pénalisante pour ce qui est du comptage des paires et des triplets, avec des facteurs 500 et 1500 environ vis-à-vis du signal du plutonium pour une épaisseur de 3 cm de plomb, et des facteurs 50 et 25 pour 5 cm de plomb. Dans le cas avec 10 cm de plomb, le signal en provenance du plutonium 240 redevient prépondérant, mais avec une statistique 3 fois inférieure en paires et 10 fois inférieure en triplets par rapport au cas à 3 cm de plomb.

Dans le cas d'une source de rayonnements gamma corrélés par paires et moins intense (cobalt 60), le constat est sensiblement le même avec un facteur 50 sur les paires et les triplets par rapport au plutonium 240 pour 3 cm de plomb. Dans le cas à 5 cm de plomb, ces facteurs retombent à respectivement 10 et 5 pour les paires et les triplets et le signal du plutonium redevient prépondérant pour 10 cm de plomb.

L'influence des rayonnements gamma en terme d'activités et d'intensités, mais aussi en terme de corrélation, est à prendre en compte pour le comptage des multiplicités, y compris à l'ordre 2 (triplets). Une épaisseur de 10 cm de plomb est préconisée pour pallier cette sensibilité, mais deux inconvénients entrent en compte :

- le système de mesure sera très lourd et pourrait dépasser la charge au sol admissible et les limites imposées par le risque sismique (effet projectile) dans certaines installations;
- des réactions de spallation sur le plomb pourront se produire avec les neutrons secondaires induits par les rayonnements cosmiques, générant un nombre de particules corrélées très élevé. Il sera alors important de caractériser cette source de bruit de fond naturel, notamment dans les ordres élevés de multiplicité en vue de soustraire sa contribution aux ordres inférieurs [Simony2017_b].

En ce qui concerne le ratio alpha, il est bien plus élevé dans certains fûts de déchets contaminés au plutonium que celui des essais répertoriés plus haut (proche de 1 : émissions de neutrons par fissions spontanées équivalentes à celles des réactions (α, n)). Les formes fluorées du plutonium, par exemple, génèrent beaucoup plus de réactions (α, n) que le PuO₂ (cf. §2.1.1). De même, les fûts de déchets issus du Procédé d'Incinération-Vitrification In Can (PIVIC) peuvent également mener à de forts taux de réactions (α, n) par la présence de verres contenant du sodium et du calcium [Simony2017_b]. Il est donc important d'étudier la capacité de la méthode à discriminer le signal utile des fissions spontanées face à un signal parasite important d'origine (α, n). Des mesures de sources californium 252 et AmBe ont permis de tester des ratios alpha de 1.2 et 25 grâce à une adaptation des temps d'acquisition de ces deux sources mesurées séparément. Le pourcentage de signal utile dans le signal total est donné pour les ordres de multiplicité 2 en Figure 19.

Le cas du ratio alpha favorable ($\alpha=1.2$) permet d'obtenir un pourcentage de signal utile supérieur à 90 % avec ou sans rejet de diaphonie. Le ratio alpha défavorable ($\alpha=25$) fait par contre chuter ce pourcentage à moins de 40 % sans rejet de la diaphonie et à 54 % avec rejet de la diaphonie. Les forts taux d'émission de neutrons (α, n), accompagnés dans 57 % des cas par un rayonnement gamma de 4.4 MeV corrélé au neutron [Liu2007], génèrent de nombreuses coïncidences d'ordres 1 et 2 et le contraste entre signal utile (²⁵²Cf) et bruit de fond (AmBe) n'est pas suffisant pour le ratio alpha élevé.



Matrice métallique

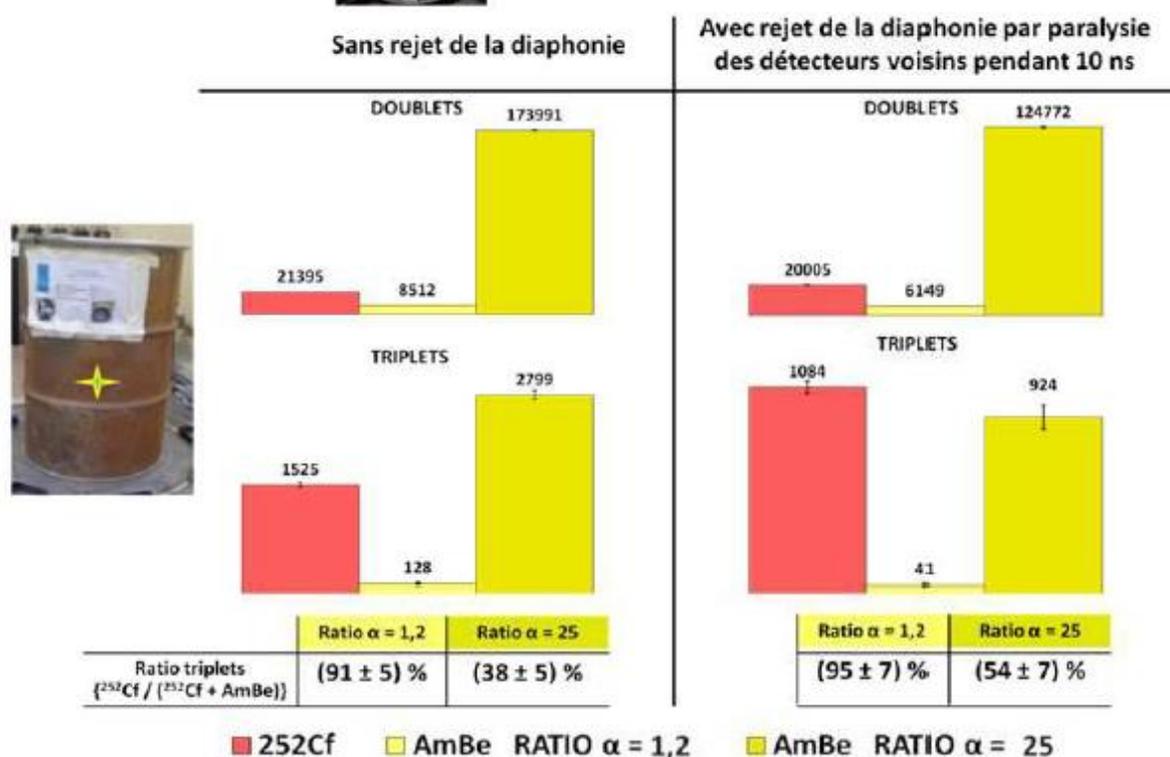


Figure 19. Comparaison des multiplicités d'ordre 1 (paires) et d'ordre 2 (triplets) obtenues avec les sources de californium 252 et d'AmBe, ainsi que du ratio $^{252}\text{Cf} / (^{252}\text{Cf} + \text{AmBe})$ dans le cas des triplets, sans et avec rejet de diaphonie pour les deux ratios alpha de 1.2 et 25 [Simony2017_b].

5. POSITIONNEMENT DE LA THESE

La thèse précédente de Benoît Simony a démontré la faisabilité de la caractérisation du plutonium dans les colis de déchets radioactifs par des mesures de coïncidences avec des scintillateurs au plastique PVT, avec la possibilité de traiter le phénomène de diaphonie et d'isoler le signal utile des fissions spontanées par l'exploitation des ordres élevés de multiplicités. Cependant, des limitations importantes ont été mises en évidence pour des fûts de déchets où se produisent beaucoup de réactions (α, n) ou ceux présentant des émissions de rayonnements gamma élevées, notamment corrélés (cascades gamma). Aussi, la méthode de dénombrement des multiplicités n'exploite pas les différents temps d'arrivée des impulsions dans les fenêtres de coïncidences, et n'exploitent donc pas les différences de temps de vol entre les neutrons et les rayonnements gamma.

Un nouvel outil de traitement de données sera donc proposé dans le chapitre 2 de la présente thèse pour réduire la sensibilité aux rayonnements gamma et optimiser le rapport signal/bruit, tout en conservant le rejet de la diaphonie. Dans cette nouvelle méthode, il s'agit également de différencier les différentes sources de coïncidences (utiles de fissions vs. parasites) grâce à la multiplicité d'émission élevée lors de fissions, mais nous approfondirons l'analyse avec l'exploitation des temps de vol des neutrons et des rayonnements gamma. Le principe consiste à représenter sur un histogramme à deux dimensions les temps d'arrivée de toutes les combinaisons de trois impulsions en coïncidences ($\gamma\gamma\gamma$, nnn , γnn , $\gamma\gamma n$, etc.), où l'identification des régions d'intérêts permet de maximiser le ratio entre le signal des fissions spontanées et le bruit des autres sources de coïncidences. Cette nouvelle méthode a fait l'objet d'un dépôt de brevet [Bottau2020_b]. Le signal utile, composé des neutrons et rayonnements gamma corrélés de fission, sera ainsi discriminé des coïncidences réelles parasites de type neutron-gamma provenant des diffusions inélastiques ($n, n'\gamma$) et des réactions (α, n), ou de type « gamma-gamma » en cascade faisant suite aux désintégrations α et β , voire aux captures radiatives (n, γ).

Dans un premier temps, les travaux de thèse portent sur l'amélioration de l'efficacité des outils de traitements des données, tout d'abord en adaptant la méthode du registre à décalage pour les compteurs à hélium 3 à la détection des neutrons rapides avec les scintillateurs PVT, et en comparant cette méthode de dénombrement des multiplicités avec la méthode antérieure [Simony2017_b]. Ensuite, le formalisme mathématique associé à ce registre à décalage sera implémenté pour le calcul des doublets et des triplets. Il prend en compte toutes les combinaisons de 2 et 3 impulsions coïncidentes possibles, ainsi que les probabilités que ces coïncidences soient accidentelles, pour en déduire le nombre réel de combinaisons de 2 et 3 impulsions corrélées. Ce formalisme, historiquement développé

pour la détection avec les compteurs à hélium 3 après thermalisation des neutrons, sera adapté à la détection directe des neutrons rapides avec les scintillateurs PVT, qui inclut la sensibilité aux rayonnements gamma.

Cet outil innovant de discrimination temporelle des coïncidences sera ensuite testé sur des mesures individuelles de sources de californium 252, AmBe, césium 137 et cobalt 60, ainsi que sur des mesures simultanées de l'ensemble des sources pour valider la faisabilité des nouveaux traitements. Des simulations réalisées à l'aide du code MCNPX-PoliMi constitueront une aide importante à l'interprétation des expériences grâce à l'apport d'informations non mesurables sur la nature des particules (du fait de l'absence de capacité de PSD avec les scintillateurs PVT basiques) et leurs origine (fissions spontanées, désintégrations α ou β , réactions diverses).

Au chapitre 3, une adaptation des méthodes de soustraction des coïncidences accidentelles identifiées dans la littérature sera également étudiée pour ce nouveau procédé de traitement des données. Aussi, des améliorations importantes de la maquette du système de mesure de la thèse précédente seront présentées :

- un passage de 8 détecteurs à 16 détecteurs pour augmenter l'efficacité de détection et pouvoir également mesurer des colis jusqu'à 220 litres (antérieurement 120 litres) ;
- un passage de l'électronique CAEN S.p.A. à 8 voies, à une nouvelle électronique FASTER à 16 voies du Laboratoire de Physique Corpusculaire de Caen (CNRS) ;
- un écran de plomb de 5 cm d'épaisseur sera implémenté pour améliorer la capacité des nouveaux outils de traitements de données à rejeter les coïncidences parasites, notamment dues aux rayonnements gamma du plutonium et d'éventuelles sources gamma pures (produits de fission et d'activation), tout en cherchant à limiter l'influence des coïncidences d'ordre élevé dues aux réactions de spallation.

Dans l'objectif de se rapprocher au maximum des cas réels de mesure de fûts de déchets radioactifs, les performances seront étudiées, par l'expérience et par la simulation, avec des fûts maquettes de 118 litres remplis de matrices métallique ou organique. Les performances à fort taux de comptage seront évaluées, notamment pour tester les limites avec de nombreuses coïncidences accidentelles et les éventuelles pertes de comptage dues au temps mort dans l'électronique.

Enfin, les limites de détection seront calculées en masse équivalente de plutonium 240 pour différentes configurations de matrices, de positions du plutonium, de taux de réactions (α, n) et d'ambiances en rayonnements gamma, corrélés ou non. Ceci permettra d'ouvrir de nouvelles perspectives pour la mesure neutronique passive des déchets radioactifs, à la fin de ce manuscrit.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE 1

[ANDRA2019] "Inventaire national des matières et déchets radioactifs" , 2019.

[Arulchakkaravarthi2001] A. Arulchakkaravarthi, P. Santhanaraghavan, P. Ramasamy, "Crystal growth of Trans-stilbene by vertical Bridgman technique with modified growth vessels and its characterization", *Journal of Crystal Growth*, vol. 224, Issues 1-2, April 2001, 89-94.

[Bottau2020_a] V. Bottau, L. Tondut, P-G. Allinei, B. Perot, C. Eleon, C. Carasco, R. De Stefano, G. Faussier, "High-Resolution gamma spectrometry of a plutonium bearing waste drum with high-energy reaction-induced gamma rays", *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 7, issue 4, April 2020.

[Bottau2020_b] V. Bottau, R. De Stefano, C. Carasco, B. Perot, C. Eleon, "Procédé de détection de radiations et système associé mettant en œuvre une discrimination des coïncidences neutron-gamma", 2020, demande de brevet en cours.

[Bourne2016_a] M. M. Bourne, "Organic scintillators in Nonproliferation Applications With a Hybridized Double-Pulse Rejection Technique" , thèse de doctorat, Université du Michigan, 2016.

[Bourne2016_b] M. M. Bourne, S. D. Clarke, N. Adamowicz, S. A. Pozzi, N. Zaitseva, L. Carman, "Neutron detection in a high-gamma field using solution-grown stilbene", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 806 (2016) 348-355.

[Brooks1960] F. D. Brooks, R. W. Pringle, B. L. Funt, "Pulse Shape Discrimination in a Plastic Scintillator" , *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 7, June 1960, pp 35-38.

[Budakovsky2007] S. V. Busakovsky, N. Z. Galunov, N. L. Karavaeva, J. K. Kim, Y. K. Kim, O. A. Tarasenko, E. Martynenko, "New Effective Organic Scintillators for Fast Neutron and Short-Range Radiation Detection" , *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 54, no. 6, December 2007.

[CAEN_V1730] CAEN, Tools for Discovery, V1730 16/8 Channel 14 bit 500 M/s Digitizer, site internet: <https://www.caen.it/products/v1730/> , accède le 09/30/2020.

[Carlson2016] J. S. Carlson, P. L. Feng, "Melt-cast organic glasses as high-efficiency fast neutron scintillators" , *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 832 (2016) 152-157.

[Carlson2017] J. S. Carlson, P. Marleau, P. L. Feng, R. A. Zarkesh, P. L. Feng, "Taking Advantage of Disorder, Small-Molecule Organic Glasses or Radiation Detection and particle Discrimination" , *Journal of the American Chemical Society*, 2017, 139, 9621-9626.

[Carman2013] L. Carman, N. Zaitseva, H. Paul Martinez, B. Rupert, I. Pawelczak, A. Glenn, H. Mulcahy, R. Leif, K. Lewis, S. Payne, "The effect of material purity on the optical and scintillation properties of solution-grown trans-stilbene crystals" , *Journal of Crystal Growth* 368 (2013) 56-61.

[Cester2014] D. Cester, G. Nebbia, L. Stevanato, F. Pino, G. Viesti, "Experimental tests of the new plastic scintillator with pulse shape discrimination capabilities EJ-299-33" , *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A* 735 (2014) 202-206.

[Chichester2008] D. L. Chichester, E. H. Seabury, "Using Electronic Neutron Generators in Active Interrogation to Detect Shielded Fissionable Materials", 2008 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record.

[Chichester2015] D. L. Chichester, S. J. Thompson, M. T. Kinlaw, J. T. Johnson, J. L. Dolan, M. Flaska, S. A. Pozzi, "Statistical estimation of the performance of a fast-neutron multiplicity system for nuclear material accountancy", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A* 784 (2015) 448-454.

[Cieslak2019] M. J. Cieslak, K. A. A. Gamage, R. Glover, "Critical Review of Scintillating Crystals for Neutron Detection", *Crystals* 2019, 9, 480.

[Crane1991] T. W. Crane, M. P. Baker, "Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Chapter 13: Neutron Detectors", NUREG/CR-5550, LA-UR-90-732, March 1991.

[D'Mellow2007] B. D'Mellow, M. D. Aspinall, R. O. Mackin, M. J. Joyce, A. J. Peyton, "Digital discrimination of neutrons and gamma-rays in liquid scintillators using pulse gradient analysis", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A* 578 (2007) 191-197.

- [DeStefano2020] R. De Stefano, "Détection et caractérisation de matières nucléaires par interrogation et activation neutronique", these de doctorat, 2020.
- [DeVita2016] R. De Vita, F. Ambi, G. Firpo, "Device and method for detecting neutrons and gamma rays", US 2016/0291196 A1, Oct. 6, 2016.
- [DEN2019] Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives, monographie de la Direction de l'Energie Nucléaire, "L'instrumentation et la mesure en milieu nucléaire", collection E-den, Le Moniteur Editions, EAN : 9782281143034, ISBN : 978-2-281-14303-4, juin 2019.
- [Deyglun2014_a] C. Deyglun, "Détection de matière nucléaire avec la technique de la particule associée", thèse de doctorat, 2014.
- [Deyglun2014_b] C. Deyglun, C. Carasco, B. Perot, C. Eleon, G. Sanié, K. Boudergui, G. Corre, V. Kondrasovs, S. Normand, P. Pras, "Passive and Active Correlation Techniques for the Detection of Nuclear Materials", IEEE Transactions on Nuclear Science, Vol. 61, n°4, 2228-2234, 2014.
- [Deyglun2015] C. Deyglun, B. Simony, B. Perot, C. Eleon, N. Saurel, S. Colas, J. Collot, "Passive neutron coincidence counting with plastic scintillators for the characterization of radioactive waste drums", ANIMMA 2015, 20-24 avril 2015, Lisbonne, Portugal.
- [DiFulvio2017] A. Di Fulvio, T. H. Shin, C. Sosa, M. L. Ruch, S. D. Clarke, D. L. Chichester, S. A. Pozzi, "Passive assay of plutonium metal plates using a fast-neutron multiplicity counter", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 855 (2017) 92-101.
- [Dolan2014] J. L. Dolan, M. Flaska, A. Poitrasson-Riviere, A. Enqvist, P. Peerani, D. L. Chichester, S. A. Pozzi, "Plutonium measurements with a fast neutron multiplicity counter for nuclear safeguards applications", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 763 (2014) 565-574.
- [Downs1958] J. W. Downs, F. L. Smith, "Organic-glass scintillators", Nucleonics 16 (1958) 94-96.
- [EJ-299] Eljen Technology, Pulse Shape Discrimination EJ-276 & EJ-276G (Formerly EJ-299-33A & EJ-299-34), site web accede le 28/02/2020, <https://eljentechnology.com/products/plastic-scintillators/ej-299-33a-ej-299-34>.
- [EJ-301-309] Eljen Technology, Neutron / Gamma PSD EJ-301 EJ-309 , site web accédé le 28/02/2020 <https://eljentechnology.com/products/liquid-scintillators/>.
- [Eleon2018] C. Eleon, F. Battiston, M. Bounaud, M. Ben Mosbah, C. Passard, B. Perot, "Study of Boron Coated Straws and mixed (10B/3He) detectors for passive neutron measurements of radioactive waste drums", 2018 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference Proceedings (NSS/MIC), Sydney, Australia, 2018, pp. 1-4.
- [Ellis2013] M. Ellis, C. Tintori, P. Schotanus, K. Duroe, P. A. Kendall, G. Mini, "The Effect of Detector Geometry on EJ-309 Pulse Shape Discrimination Performance" , 2013 IEEE.
- [Ensslin1991_11] N. Ensslin, "Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Chapter 11: The origin of Neutron Radiation", NUREG/CR-5550,LA-UR-90-732, March 1991.
- [Ensslin1991_16] N. Ensslin, "Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Chapter 16: Principles of Neutron Coincidence Counting", NUREG/CR-5550,LA-UR-90-732, March 1991.
- [Ensslin1998] N. Ensslin, "Application Guide to Neutron Multiplicity Counting", LA-13442-M, UC-700, November 1998.
- [Fanchini2016] E. Fanchini, "Performance of an RPM Based on Gd-lined Plastic Scintillator for Neutron and Gamma Detection", IEEE Transactions on Nuclear Science, vol 63, no 1, February 2016.
- [Galunov2006] N. Z. Galunov, E. V. Martynenko, O. A. Tarasenko, "Methodical aspects and measuring set-up for investigation the ability to selective detection of different ionizing radiations by organic scintillators", Functional Materials 13 (2006).
- [Gamage2015] K. A. A. Gamage, G. C. Taylor, "Neutron gamma fraction imaging: Detection, location, and identification of neutrons sources", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 788 (2015) 9-12.

- [Glodo2017] J. Glodo, Y. Wang, R. Shawgo, C. Brecher, R. H. Hawrami, J. Tower, K.S. Shah, "New developments in Scintillators for Security Applications", Conference on the Application of Accelerators in Research and Industry, CAARI 2016, 30 October – 4 November 2016, Worth, TX, USA.
- [Gueorguiev2015] A. Gueorguiev, E. van Loef, G. Markosyan, L. Soundara-Pandian, J. Glodo, J. Tower, K. Shah, "Composite Neutron Gamma Detector", 2015 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (NSS/MIC), San Diego, CA, 2015, pp. 1-3.
- [Hehlen2018] M. P. Hehlen, B. W. Wiggins, A. Favalli, M. Iliev, K. D. Ianakiev, "Light propagation in a neutron detector based on ^6Li glass scintillator particles in an organic matrix", *J. Appl. Phys.* 124, 124502 (2018) <http://doi.org/10.1063/1.5047433>, September 2018.
- [Henzlova2013] D. Henzlova, L. G. Evans, H. O. Menlove, M. T. Swinhoe, J. B. Marlow, "Experimental evaluation of a boron-lined parallel plate proportional counter for use in nuclear safeguards coincidence counting", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 697 (2013), 114-121.
- [Henzlova2015] D. Henzlova, R. Kouzes, R. McElroy, P. Peerani, M. Aspinall, K. Baird, A. Bakel, A. Borella, M. Bourne, L. Bourva, F. Cave, R. Chandra, D. Chernikova, S. Croft, G. Dermody, A. Dougan, J. Ely, E. Fanchini, P. Finocchiaro, V. Gavron, M. Kureta, K. Ianakiev, K. Ishiyama, T. Lee, Ch. Martin, K. Mc Kinny, H. Menlove, C. Orton, A. Pappalardo, B. Pedersen, D. Peranteau, R. Plenteda, S. Pozzi, M. Schear, M. Seya, E. Siciliano, S. Stave, L. Sun, M. Swinhoe, H. Tagziria, J. Takamine, S. Vaccaro, A.-L. Weber, T. Yamaguchi, H. Zhu, "Current Status of ^3He Alternative Technologies for Nuclear Safeguards", LA-UR-15-21201 Ver. 3, PNNL 24307, July 2015.
- [Holm2013] P. Holm, K. Peräjävi, A.-P. Sihvonen, T. Siiskonen, H. Toivonen, "Neutron detection with a NaI spectrometer using high-energy photons", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A* 697 (2013) 59-63.
- [IAEA1970] Agence Internationale de l'Energie Atomique, "Traité sur la non-prolifération des armes nucléaires", INFCIRC/140, 22 avril 1970.
- [IAEA2006] "Joint convention on the Safety of Spent Fuel Management and on the Safety of Radioactive Waste Management", IAEA International Law Series no. 1, International Atomic Energy Agency, Vienna, 2006.
- [Ianakiev2014] K. D. Ianakiev, M. P. Hehlen, M. T. Swinhoe, A. Favalli, M. L. Iliev, T. C. Lin, B. L. Bennett, M. T. Barker, "Neutron detector based on particles of ^6Li glass scintillator dispersed in organic lightguide matrix", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A* 784 (2015) 189-193.
- [Ihantola2018] S. Ihantola, O. Tengblad, H. Toivonen, K. Peräjärvi, C. Csome, J. Borg, J. Paepen, H. Tagziria, P. Gattinesi, European Reference Network for Critical Infrastructure Protection: Radiological and Nuclear Threats to Critical Infrastructure Thematic Group: "Novel detection technologies for nuclear security", EUR 29270 EN, doi:10.2760/703301.
- [Jallu2011] F. Jallu, P-G Alinei, P Bernard, J. Loridon, P. Soyer, D. Pouyat, L. Torreblanca, A. Reneleau, "The Use of Non-Destructive Passive Neutron Measurement Methods in Dismantling and Radioactive Waste Characterization", IEEE 2011.
- [Jallu2012] F. Jallu, P-G. Alinei, P. Bernard, J. Loridon, D. Pouyat, L. Torreblanca, "Cleaning up of a nuclear facility: Destocking of Pu radioactive waste and nuclear Non-Destructive Assays", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B* 283 (2012) 15-23.
- [Johnson2015] E. B. Johnson, C. Whitney, S. Vogel, J. F. Christian, K. Holbert, P. Chandhran, "High Event Rate, Pulse Shape Discrimination Algorithm for CLYC", 2015 IEEE International Symposium on Technologies for Homeland Security (HST) .
- [Jordan2008] K. A. Jordan, T. Gozani, J. Vujic, "Differential die-away analysis system response modeling and detector design", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A* 589 (2008), 436-444.
- [Knoll1989] G. F. Knoll, "Radiation Detection and Measurement", 4th edition, 1989.
- [Kouzes2009] Kouzes, Richard T. "The ^3He Supply Problem". United States: N. p., 2009. Web. doi:10.2172/956899
- [Kouzes2010] R. T. Kouzes, J. H. Ely, L. E. Erikson, W. J. Kernan, A. T. Lintereur, E. R. Siciliano, D. L. Stephens, D. C. Stromswold, R. M. Van Ginhoven, M. L. Woodring, "Neutron detection alternatives to ^3He for national security applications", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 623 (2010) 1035-1045.
- [Kouzes2014] R. T. Kouzes, J. H. Ely, A. T. Lintereur, E. R. Siciliano, "Boron-10 Based Neutron Coincidence Counter for Safeguards", *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 61, no 5, October 2014.

- [Ku2018] K. Ku, J. F. Joung, H. Park, M-G. Kim, S. Park, W. Kim, "Fluorescent Organic Glass with Unique Optical and mechanical Properties", *Advanced Functional Materials*, 2018, 1801394.
- [Lacy2013] J. L. Lacy, A. Athanasiades, L. Sun, C. S. Martin, G. J. Vasquez-Flores, M. Regmi, S. Croft, "A Coincidence Counter Design Based on Boron-Coated Straw", *Proceedings of the 55th Annual INMM Annual Meeting*, Atlanta, Ga., 2013.
- [Lam2018] S. Lam, J. Fiala, M. Hackett, S. Motakef, "A High-Performance CLYC(Ce)-PVT Composite for Neutron and Gamma Detection", *IEEE transactions on Nuclear Science*, vol. 65, no. 1, January 2018.
- [Langeveld2017] W. G. J. Langeveld, M. J. King, J. Kwong, D. T. Wakeford, "Pulse Shape Discrimination Algorithms, Figures of Merit, and Gamma-rejection for Liquid and Solid Scintillators", *IEEE Transaction on Nuclear Science*, vol. 64, no. 7, July 2017.
- [Langeveld2020] W. G. J. Langeveld, A. M. Glenn, S. A. Sheets, D. A. Strellis, N. P. Zaitseva, "Comparison of pulse shape discrimination performance of stilbene and liquid scintillator under high-count rate active interrogation conditions", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, A 954 (2020) 161204.
- [Laraweb] Nucléide – Lara, Library for gamma and alpha emissions, site internet : <http://www.nucleide.org/Laraweb/index.php>, consulté le 13/03/2020.
- [Lawrence2014] C. C. Lawrence, M. Febraro, T. N. Massey, M. Flaska, "Neutron response characterization for an EJ-299-33 plastic scintillation detector", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, A 759 (2014) 16-22.
- [Liu2007] Z. Liu, J. Chen, P. Zhu, Y. Li, G. Zhang, "The 4.438 MeV gamma to neutron ratio for the Am-Be neutron source", *Applied Radiation and Isotopes*, 65, April 2007.
- [Liu2010] G. Liu, M. J. Joyce, X. Ma, M. D. Aspinall, "A digital Method for the Discrimination of Neutrons and gamma-rays With Organic Scintillation Detectors Using Frequency Gradient Analysis", *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 57, no. 3, June 2010.
- [Marchi2019] T. Marchi, F. Pino, C. L. Fontana, A. Quaranta, E. Zanazzi, M. Vesco, M. Cinausero, N. Daldosso, V. Paterlini, F. Gramegna, S. Moretto, G. Collazuol, M. Degerlier, D. Fabris, S. Carturan, "Optical properties and pulse shape discrimination in siloxane-based scintillation detector", *Scientific reports* vol. 9, 1 9154. 24 Jun. 2019, doi:10.1038/s41598-019-45307-8.
- [Martinez2018] T. Martinez, A. Perez de Rada, D. Cano-Ott, R. Santorelli, I. Bandac, P. Garcia Abia, A. R. Garcia, A. Ianni, E. Mendoza, B. Montes, L. Romero, D. Villamarin, "Characterization of CLYC detector for underground experiments", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, A 906 (2018) 150-158.
- [Mayer2015] M. Mayer, J. Nattress, C. Trivelpiece, I. Jovanovic, "Geometric optimization of a neutron detector based on a lithium glass-polymer composite", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* A 784 (2015) 168-171.
- [McElroy2014] R. D. McElroy, S. Croft, "Application of 10B-Lined Proportional Counters" to Traditional Neutron Counting Applications in International Safeguards", *IAEA Symposium on International Safeguards: Linking Strategy, Implementation, and people*, October 2014, Vienna, Austria.
- [McElroy2015] R. D. McElroy, Jr. "3He Alternatives Summary Report", ORNL/TM-2015/310, November 2015.
- [Menlove1996] H. O. Menlove, D. H. Beddingfield, M. M. Pickrell, "The design of a high-efficiency neutron counter for waste drums to provide optimized sensitivity for plutonium assay", (CONF-970726--), United States.
- [Menlove2011] H. O. Menlove, D. Henzlova, L. G. Evans, M. T. Swinhoe, J. B. Marlow, "3He Replacement for Nuclear Safeguards Applications – an Integrated Test Program to Compare Alternative Neutron Detectors", LA-UR-11-02699, ESARDA 40th Annual Meeting, May 2011.
- [Mirion_IWAS] Mirion Technologies, IWAS Integrated Waste Assay System, site internet : <https://www.mirion.com/products/iwas-integrated-waste-assay-system>, consulté le 13/02/2020.
- [Mirion_JCC31] Mirion Technologies, JCC-31 High Level Neutron Coincidence Counter, site internet: <https://www.mirion.com/products/jcc-31-high-level-neutron-coincidence-counter>, consulté le 06/03/2020.

- [Mirion_WM3100] Mirion Technologies, WM3100 HENC High-Efficiency Passive Neutron Counter, site internet: <https://www.mirion.com/products/wm3100-high-efficiency-passive-neutron-counter-henc>, consulté le 13/02/2020.
- [Nakhostin2013] N. Nakhostin, "A new digital method for high-precision neutron-gamma discrimination with liquid scintillation detectors", JINST 8 P05023.
- [Oberstedt2017] S. Oberstedt, A. Dragic, A. Gatera, A. Göök, F-J Hamsch, A. Oberstedt, "Prompt fission γ -ray data from spontaneous fission and the mechanism of fission-fragment de-excitation", EPJ Web of Conferences, 146, 04060, 2017.
- [Orano] Orano, Tout savoir sur le plutonium. Site internet : <https://www.orano.group/fr/decodage/tout-savoir-sur-le-plutonium>, accédé le 11/03/2020.
- [Paff2016] M. G. Paff, S. D. Clarke, S. A. Pozzi, "Organic liquid scintillation detector shape and volume impact on radiation portal monitors", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 825 (2016) 31-39.
- [Pawelczak2014] I. A. Pawelczak, A. M. Glenn, H. P. Martinez, M. L. Carman, N. P. Zaitseva, S. A. Payne, "Boron-loaded plastic scintillator with neutron- γ pulse shape discrimination capability", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 751 (2014) 62-69.
- [Pedersen2015] B. Pedersen, J-M Crochemore, M. Mosconi, Valeriy Mayorov, H. Tagziria, A. Ocherashvili, E. Roesgen, P. Schwalbach, "A prototype BF₃ based neutron multiplicity counter for nuclear safeguards", Proceedings of 37th ESARDA Symposium on Safeguards and Nuclear Non-Proliferation, UK, 19-21 may 2015.
- [Perot1996] B. Perot, "Optimisation des méthodes de mesure neutronique active pour les déchets radioactifs et contribution à la modélisation d'un dispositif industriel", thèse de doctorat, 1996.
- [Perot2018] B. Perot, F. Jallu, C. Passard, O. Gueton, P-G. Allineï, L. Loubet, N. Estre, E. Simon, C. Carasco, C. Roure, L. Boucher, H. Lamotte, J. Comte, M. Bertaux, A. Lyoussi, P. Fichet, F. Carrel, "The characterization of radioactive waste : a critical review of techniques implemented or under development at CEA, France", EPJ Nuclear Sciences & Technologies. 4, 3 (2018).
- [Porcher2013] J. B. Porcher, T. Lambert, N. Saurel, H. Schoech, L. Tondut, "Dossier de Recommandation pour l'Optimisation des Mesures Neutroniques Passives", rapport CEA ISSN 0429-3460, 2013.
- [Pozzi2003] S. A. Pozzi, E. Padovani, M. Marseguerra, "MCNP-PoliMi, a Monte-Carlo code for correlation measurements", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 513 (2003) 550-558.
- [Pozzi2012] S. A. Pozzi, W. J. Walsh, E. C. Miller, J. L. Dolan, M. Flaska, A. Enqvist, E. Padovani, J. K. Mattingly, D. L. Chichester, P. Peerani, "MCNPX-PoliMi for nuclear nonproliferation applications", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 694 (2012) 119-125.
- [Pozzi2013] S. A. Pozzi, M. M. Bourne, S. D. Clarke, "Pulse Shape Discrimination in the plastic scintillator EJ-299-33", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 723 (2013) 19-23.
- [Robinson2015] S. M. Robinson, S. Stave, A. Lintereur, E. Siciliano, R. Kouzes, M. Bliss, "Neutron pileup algorithms for multiplicity counters", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 784 (2015) 293-297.
- [Roy2018] P. Roy, K. Banerjee, A. K. Saha, C. Bhattacharya, J. K. Meena, P. Bhaskar, S. Mukhopadhyay, S. Bhattacharya, "Detailed investigation on the possibility of using EJ-299-33A plastic scintillator for fast neutron spectroscopy in large scale experiments", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 901 (2018) 198-202.
- [Schear2015] M. Schear, D. Ramsden, M. Foster, G. Dermody, H. Tagziria, B. Peterson, P. Peerani, "Monte Carlo Modeling and Experimental Evaluation of a 6LiF:ZnS(Ag) Test Module for Use in Nuclear Safeguards Neutron Coincidence Counting Applications", 2015, Symposium on Nuclear Safeguards: Linking Strategy, Implementation and People.
- [Sears1992] V. F. Sears, "Neutron scattering lengths and cross sections", Neutron News, vol. 3, no. 3, pp 26-37, Jan 1992.
- [Shea2010] D. A. Shea, D. Morgan, (2011), "The Helium-3 Shortage: Supply, Demand, and Options for Congress", Congressional Research Service, R41419.

- [Shin2018] T. H. Shin, A. Di Fulvio, S. D. Clarke, S. A. Pozzi, "Stilbene-based Fast Neutron Multiplicity Counter or Nuclear Safeguards Applications", 2018 IEEE Conference Record.
- [Shin2019] T. H. Shin, P. L. Feng, K. S. Carlson, S. D. Clarke, S. A. Pozzi, "Measured neutron light-output response for trans-stilbene and small-molecule organic glass scintillators", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 939 (2019) 36-45.
- [Shirwadkar2013] U. Shirwadkar, E. V. D. van Loef, G. Markosyan, J. Glodo, L. Soundara-Pandian, V. Biteman, A. Gueorguiev, K. S. Shah, S. Pozzi, S. Clarke, M. Bourne, "New Generation Plastic Scintillators for Fast Neutron Spectroscopy and Pulse Shape Discrimination", 2013 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference Record (NSS/MIC), ISBN 978-1-4799-0534-8.
- [Shirwadkar2017] U. Shirwadkar, A. Gueorguiev, E. V. van Loef, G. Markosyan, J. Glodo, J. Tower, K. S. Shah, S. Pozzi, S. Clarke, M. Bourne, "Multi-Signature Composite Detector System for Nuclear Non-proliferation", 2017 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (NSS/MIC), Atlanta, GA, 2017, pp. 1-4.
- [Shirwadkar2020] U. Shirwadkar, E. van Loef, G. Markosyan, J. Tower, M. Spens, C. Ji, L. S. Pandian, A. Gueorguiev, J. Glodo, K. Shah, S. Pozzi, S. Clarke, W. Langeveld, D. Strellis, J. Garcia, "Low-cost, multi-mode detector solutions", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 954, 2020, 161289.
- [Siciliano2008] E. R. Siciliano, J. H. Ely, R. T. Kouzes, J. E. Swepe, D. M. Strachan, S. T. Yokuda, "Energy calibration of gamma spectra in plastic scintillators using Compton kinematics", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 594, 2008, 232-243.
- [Simony2016] B. Simony, C. Deyglun, B. Pérot, C. Carasco, N. Saurel, S. Colas, J. Collot, "Cross-Talk Characterization in Passive Neutron Coincidence Counting of Radioactive Waste Drums With Plastic Scintillators", IEEE Transactions on Nuclear Science, vol. 63, no. 3, june 2016.
- [Simony2017_a] B. Simony, B. Perot, C. Carasco, F. Jallu, N. Saurel, S. Colas, P. Gironès, J. Collot, "Passive Neutron Coincidence Counting With Plastic Scintillators for the Characterization of Radioactive Waste Drums", IEEE Transactions on Nuclear Science, vol. 64, no. 10, october 2017.
- [Simony2017_b] B. Simony, "Mesure neutronique passive des colis de déchets radioactifs par comptage des coïncidences avec des scintillateurs plastiques", thèse de doctorat, 2017.
- [Simpson2011] A. P. Simpson, S. Jones, M. J. Clapham, S. A. McElhaney, "Performance characteristics of a High Efficiency Passive Neutron Assay System using Alternative Neutron Detector to Helium-3", 2011 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record.
- [Stewart1991] J. E. Stewart, "Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Chapter 14: Principles of Total Neutron Counting", NUREG/CR-5550,LA-UR-90-732, March 1991.
- [Taggart2018] M. P. Taggart, P. J. Sellin, "Comparison of the pulse shape discrimination performance of plastic scintillators coupled to a SiPM", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 908 (2018) 148-154
- [Tagziria2015] H. Tagziria, M. Foster, M. Shear, D. Ramsden, G. Dermody, B. Pedersen, P. Peerani, P. Schwalbach, "Experimental Assessment of a 6LiF:ZnS(Ag) Prototype Neutron Coincidence Counter for Safeguards", ESARDA Bulletin No.53, 2015, pg.30.
- [Toubon2001] H. Toubon, G. Mehlman, T. Gain, A. Lyoussi, B. Pérot, A.-C. Raoux, M. Huver, "Innovative nuclear measurement techniques used to characterize waste produced by COGEMA's new compaction facility", Proc. of WM'01, Waste Management Conference (2001) 19 p., February 25-March 1, 2001, Tucson, AZ, USA
- [vanEijk2004] C. W. E. van Eijk, "Radiation Measurements", 38 (4-6) (2004) 337.
- [vanEijk2012] C. W. E. van Eijk, "Inorganic Scintillators for Thermal Neutron Detection", IEEE Transactions on Nuclear Science, vol. 59, no. 5, October 2012.
- [vanLoef2002] E. V. van Loef, P. Dorenbos, C. W. E. van Eijk, K. W. Krämer, H. U. Güdel, "Scintillation and spectroscopy of the pure and Ce³⁺-doped elpasolites: Cs₂LiYX₆ (X=Cl,Br)", Journal of Physics Condensed Matter, 14, 2002, 8481-8496.
- [vanLoef2012] E. V. van Loef, G. Markosyan, U. Shirwadkar, K. S. Shah, "Advanced Plastic Scintillators with Pulse Shape Discrimination", 2012 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference Record (NSS/MIC).

- [Wengrowicz2020] U. Wengrowicz, A. Osovizky, A. Ocherashvili, D. Ginzburg, Y. Ifergan, E. Volasky, Y. Kadmon, A. Raveh, I. Orion, "Optimization of Neutron Detection Module based on Li-Glass scintillator and an array of SiPMs", EPJ Web of Conferences 225, 07012 (2020).
- [Winyard1971] R. Winyard, J. Lutkin, G. McBeth, "Pulse Shape Discrimination in Inorganic and Organic Scintillators" Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 1971, 95(1), 141-153.
- [Woolf2015] R. S. Woolf, A. L. Hutcheson, C. Gwon, B. F. Philips, E. A. Wulf, "Comparing the response of PSD-capable plastic scintillator to standard liquid scintillator", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 784 (2015) 80-87.
- [Yousefi2009] S. Yousefi, L. Lucchese, M. D. Aspinall, "Digital discrimination of neutrons and gamma-rays in liquid scintillators using wavelets", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 598 (2009) 551-555.
- [Zaitseva2012] N. Zaitseva, B. L. Rupert, I. Pawelczak, A. Glenn, H. P. Martinez, L. Carman, M. Fasut, N. Cherepy, S. Payne, "Plastic Scintillators with efficient neutron/gamma pulse shape discrimination", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 668 (2012) 88-93.
- [Zaitseva2013] N. Zaitseva, A. Glenn, H. P. Martinez, L. Carman, I. Pawelczak, M. Faust, S. Payne, "Pulse shape discrimination with lithium-containing organic scintillators", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 729 (2013) 747-754.
- [Zaitseva2015] N. Zaitseva, A. Glenn, L. Carman, H. P. Martinez, R. Hatarik, H. Klapper, S. Payne, "Scintillation properties of solution-grown trans-stilbene single crystals", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 789 (2015) 8-15.
- [Zaitseva2018] N. P. Zaitseva, A. M. Glenn, A. N. Mabe, M. L. Carman, C. R. Hurlbut, J. W. Inman, S. A. Payne, "Recent developments in plastic scintillators with pulse shape discrimination", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 889 (2018) 97-104.

Chapitre 2 – Méthode de discrimination temporelle des coïncidences par analyse des temps de vol

1. DISPOSITIF EXPERIMENTAL DES 1^{ER} ESSAIS

1.1 PRESENTATION DU SYSTEME DE MESURE

1.1.1 Détecteurs

Le dispositif expérimental des premiers essais, présenté dans la Figure 20 suivante, est une version préliminaire au dispositif final présenté dans le chapitre 3 de ce manuscrit. Il est constitué de 8 scintillateurs EJ-200 [EJ200], de dimensions 10x10x100 cm³, couplés à des photomultiplicateurs 3M-P-E1-X-N (*Electron Tubes Enterprises Ltd*) dont l'assemblage a été réalisé par la société Scionix.



Propriétés des scintillateurs EJ-200	
Rendement lumineux (en % anthracène)	64
Longueur d'onde d'émission (nm)	425
Longueur d'atténuation (cm)	380
Temps de montée / Temps de descente (ns)	0,9 / 2,1
Densité (g.cm ⁻³)	1,023

Figure 20. Dispositif expérimental des premiers essais et propriétés des scintillateurs EJ-200 [EJ-200].

Les scintillateurs EJ-200 disposent de temps de montée et de temps de descente des impulsions intrinsèquement très courts (avec le photomultiplicateur et les réflexions de lumière dans le scintillateur ces temps sont en pratique plus longs, l'impulsion totale durant typiquement 60 ns pour nos détecteurs), ainsi que d'une grande longueur d'atténuation de la scintillation (presque 4 fois la taille des scintillateurs utilisées) ce qui les rend propice à une utilisation pour des mesures de temps de vol [EJ-200].

1.1.2 Sources radioactives utilisées pour l'étude

Les sources radioactives utilisées pour cette étude, dont les caractéristiques sont présentées dans le Tableau 12, ont été positionnées à mi-hauteur sur un support de 50 cm de haut et à 35 cm en distance radiale de chaque détecteur.

Tableau 12. Sources étalons utilisées pour les mesures.

Sources	Activité réactualisée (en kBq)	Taux d'émission neutronique (s ⁻¹)	Taux d'émission gamma (s ⁻¹)
²⁵² Cf	2,28.10 ²	3,6.10 ⁴ (par fission spontanée)	7,5.10 ⁴ (fissions spontanées)
AmBe	3,68.10 ⁶	2,3.10 ⁵ (par réaction (α,n))	1,3.10 ⁵ (réactions (α,n))
⁶⁰ Co	8,82.10 ²	sans objet	1.76.10 ⁶ (désintégrations β).

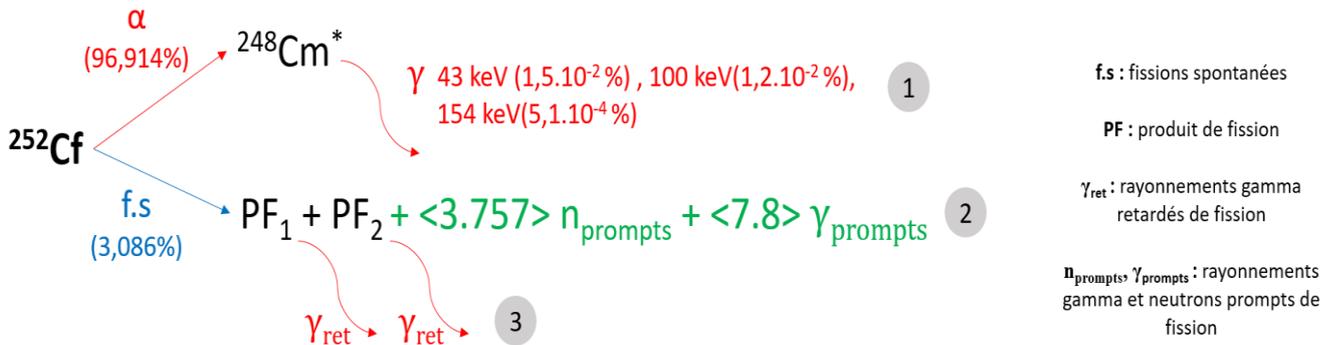


Figure 21. Diagramme des désintégrations du ^{252}Cf [Laraweb] [Ensslin1991_11].

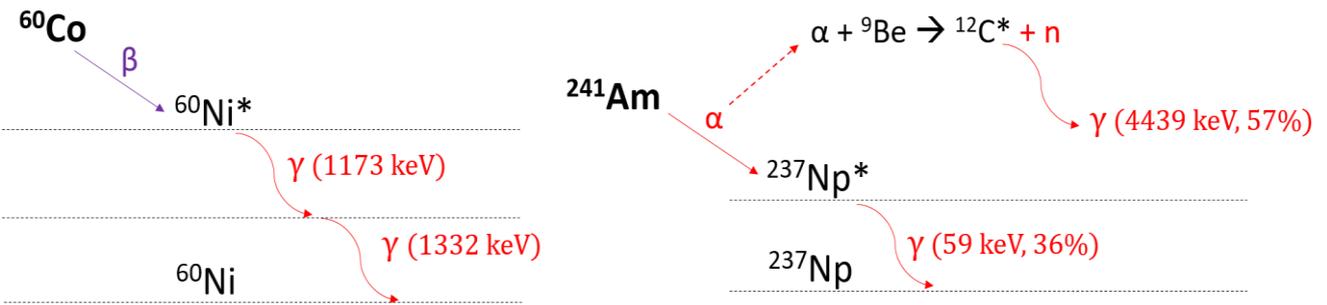


Figure 22. Diagrammes des désintégrations du ^{60}Co (à gauche) et de l'AmBe (à droite) [Laraweb] [Liu2007].

La source de ^{252}Cf dispose d'un fort rapport d'embranchement vers la fission spontanée (3,086%, Figure 21 [Laraweb]), plusieurs ordres de grandeurs au-dessus des isotopes du plutonium dont la quasi intégralité des désintégrations se fait par voie alpha, par exemple $8.4 \cdot 10^9$ désintégrations alpha pour seulement 472 fissions spontanées par seconde et par gramme de ^{240}Pu [Ensslin1991_11]. Les fissions spontanées du ^{252}Cf génèrent un nombre important de particules prompts corrélées (en moyenne 3.757 neutrons et 7.8 rayonnements gamma par fission Ensslin1991_Chap11) constituant le signal utile que nous chercherons à mesurer en coïncidence. Le ^{252}Cf émet aussi des neutrons et rayonnements gamma retardés émis par les filiations des produits de fissions, donc sans corrélation temporelle avec les particules prompts pour la mesure des coïncidences. Dans le cadre de cette étude, les neutrons retardés, de l'ordre de seulement 0.9 pour 100 fissions spontanées du ^{252}Cf [Waldo1981], émis de quelques millisecondes jusqu'à quelques minutes après la fission [Gozani1981], seront négligés. Les rayonnements gamma retardés, plus nombreux, seront simulés pour le comptage total (« coïncidences d'ordre 0 »). Le ^{252}Cf génère également des rayonnements gamma issus de la désexcitation du noyau résiduel de la désintégration α , le ^{248}Cm , à de faibles énergies et avec des intensités très faibles (de 10^{-2} à 10^{-4} %, Figure 21). Au chapitre 3, des plaquettes de plutonium seront utilisées pour mesurer le signal utile de fission spontanée dans des conditions réalistes (fûts maquettes).

L'AmBe est une source de réactions (α, n) générant des neutrons parasites. Les neutrons issus de telles réactions peuvent être prépondérants par rapport aux fissions spontanées dans un fût de déchets radioactifs, selon la nature chimique du plutonium (métallique, PuO_2 ou PuF_4) ou la matrice support des émetteurs alpha (^{241}Am , Pu, etc.) où ils peuvent être à proximité de noyaux légers (comme dans [Bottau2020] où ils sont dans un média filtrant avec des éléments comme B, O, F, Na, Mg, Si, etc.). L'activité de la source AmBe est celle de la désintégration α du ^{241}Am et la réaction $^9\text{Be}(\alpha, n)^{12}\text{C}$ se produit en moyenne une fois toutes les 8000 à 12000 désintégrations alpha [Ensslin1991_11].

Le ^{60}Co représente un signal parasite de rayonnements gamma corrélés (cascade gamma, cf. Figure 22) et ce produit d'activation généré en réacteurs par capture neutronique sur le ^{59}Fe est souvent présent dans les fûts de déchets, comme certains produits de fissions à vie longue (le plus souvent du ^{137}Cs que nous aborderons aussi au chapitre 3, mais qui est moins pénalisant car il n'émet pas de rayonnements gamma corrélés).

Afin de se prémunir de forts taux de comptage provoqués par la raie gamma du ^{241}Am , à 59 keV (intensité de 36% [Laraweb]), la source est enveloppée d'une épaisseur de 2 mm de plomb. En pratique, un seuil de 100 keV est aussi appliqué en post traitement pour limiter la contribution de nombreuses raies X et gamma de faible énergie du plutonium [Ensslin1991_1] [Bottau2020].

1.1.3 Système d'acquisition de données

Les données sont enregistrées à l'aide d'un numériseur d'impulsions DT5730 de 8 voies [CAEN_DT5730], illustré sur la Figure 23, et qui permet de numériser les impulsions analogiques à une fréquence d'échantillonnage de 500 MHz sur 14 bits. Des algorithmes d'intégration de la charge et de calcul du temps de détection (*Timestamp* par la méthode CFD, « *Constant Fraction Discriminator* ») sont appliqués à chaque impulsion. Les données sont transmises au PC d'acquisition avec un débit allant jusqu'à 50 MB.s⁻¹ via un port USB2. Ce numériseur est utilisable avec deux logiciels usine (*firmware*) différents, l'un en PHA (*Pulse Height Analysis*) pour les analyses par amplitude des impulsions, et l'autre en PSD (*Pulse Shape Discrimination*) pour les intégrations de charge et la discrimination par la forme des impulsions. Malgré le fait qu'il est impossible de réaliser la PSD avec des impulsions produites par des scintillateurs EJ-200, le *firmware* PSD sera quand même utilisé pour bénéficier de l'intégration de la charge.



Figure 23. Illustration du module DT5730 fabriqué par la société CAEN [CAEN_DT5730].

Le Logiciel CoMPASS (« *CAEN Multi-Parameter Spectroscopy Software* ») [CAEN_CoMPASS] est utilisé pour le paramétrage de la numérisation et du traitement des impulsions ainsi que pour le pilotage de l'acquisition. Pour la numérisation des impulsions analogiques, l'intégration de charge est réglée sur une fenêtre de 60 ns et la fenêtre d'échantillonnage est réglée à 182 ns, minimum autorisé par CoMPASS.

1.2 ETALONNAGE EN ENERGIE

Les scintillateurs plastiques sont constitués d'éléments chimiques à faible numéro atomique (hydrogène et carbone). De ce fait, l'interaction prédominante pour des rayonnements gamma est l'effet Compton et les pics de pleine énergie ne sont pas visibles sur le spectre. Il est donc nécessaire de s'appuyer sur la présence des fronts Compton pour étalonner les détecteurs en énergie. L'utilisation de sources multi-raies telles que le ¹⁵²Eu, couramment utilisé en spectrométrie gamma, est impossible car les fronts Compton sont confondus du fait de la mauvaise résolution des scintillateurs organiques. L'utilisation de plusieurs sources de rayonnements gamma mono-énergétiques, ou d'énergies suffisamment proches pour être considérées comme confondues, est alors nécessaire :

- ¹³⁷Cs, d'activité initiale $A_0 = 413$ kBq au 07/07/2014. Cette source dispose d'une raie gamma à 662 keV [Firestone1996] ;
- ⁶⁰Co, d'activité initiale $A_0 = 3.2$ MBq au 28/03/2019. Cette source émet deux rayonnements gamma en cascade à 1173 keV et 1331 keV [Firestone1996]. Le spectre en énergie du scintillateur plastique ne présente qu'un front Compton à l'énergie moyenne ;
- AmBe, d'activité initiale $A_0 = 3.68$ MBq, et d'émission neutronique $2,3 \cdot 10^5$ n.s⁻¹ au 06/10/2014. Dans 57% des réactions (α, n) générées par cette source, le noyau résiduel de ¹²C se retrouve dans un état excité et émet une raie gamma de désexcitation à 4.439 MeV [Liu2007] (cf Figure 22).

Une méthode pour étalonner les scintillateurs plastiques à partir de telles sources est décrite dans [Siciliano2008], reprise dans la thèse [Simony2017] et pour les présents travaux :

- une modélisation MCNP d'une source ponctuelle disposé à proximité d'un scintillateur plastique permet d'obtenir un spectre théorique de dépôt d'énergie dans le scintillateur. Dans le cas d'une simulation, aucune dégradation de résolution énergétique n'est présente, et le spectre simulé présente un front Compton piqué, visible en Figure 24 (en bleu) ;
- l'application d'une convolution gaussienne permet de prendre la résolution énergétique avec la carte GEB de MCNP (« *Gaussian Energy Broadening* »), voir Figure 24 (en rouge) ;
- un ratio entre le canal du maximum de l'ajustement gaussien (ajustée sur la bosse du front Compton) et le canal du front Compton théorique est ainsi déterminé, et sera appliqué expérimentalement pour étalonner les détecteurs. Il vaut 0.895 pour l'exemple d'une source de ¹³⁷Cs en Figure 24. La Figure 25 présente un spectre expérimental sur lequel le ratio est appliqué pour remonter au canal du front Compton théorique.

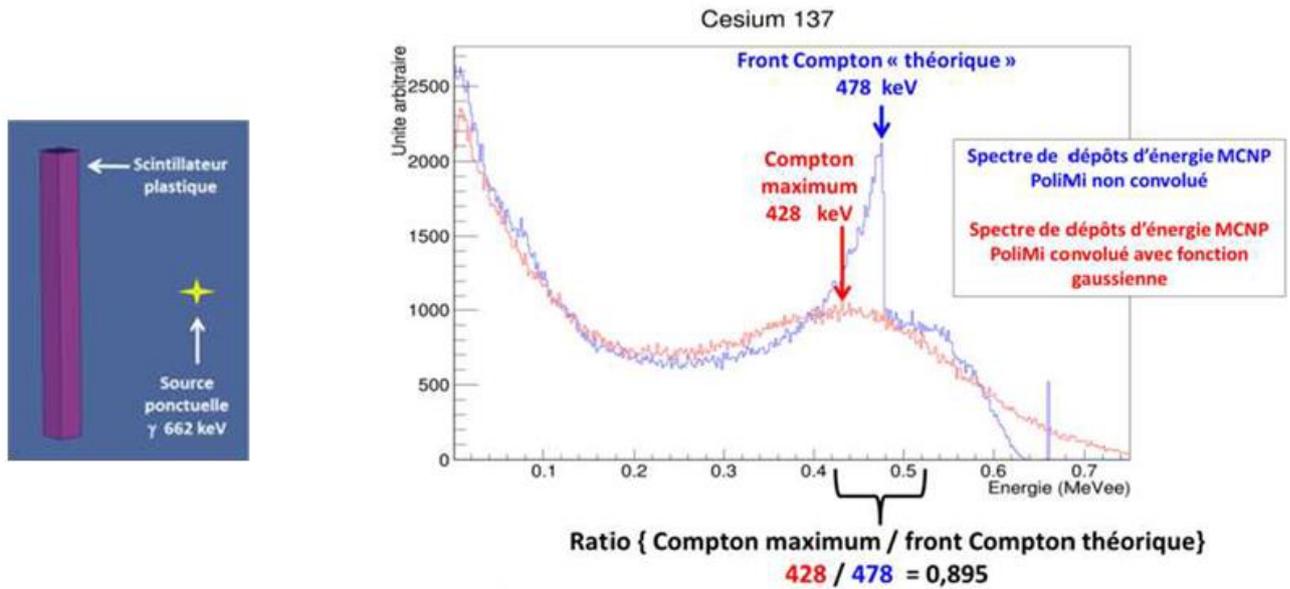


Figure 24. Illustration de la méthode de recherche du front Compton pour l'étalonnage en énergie des scintillateurs plastique. A gauche le modèle MCNP, à droite les spectres en énergie idéal (résolution parfaite, en bleu) et avec la résolution du scintillateur plastique (en rouge) pour une source de ^{137}Cs [Simony2017].

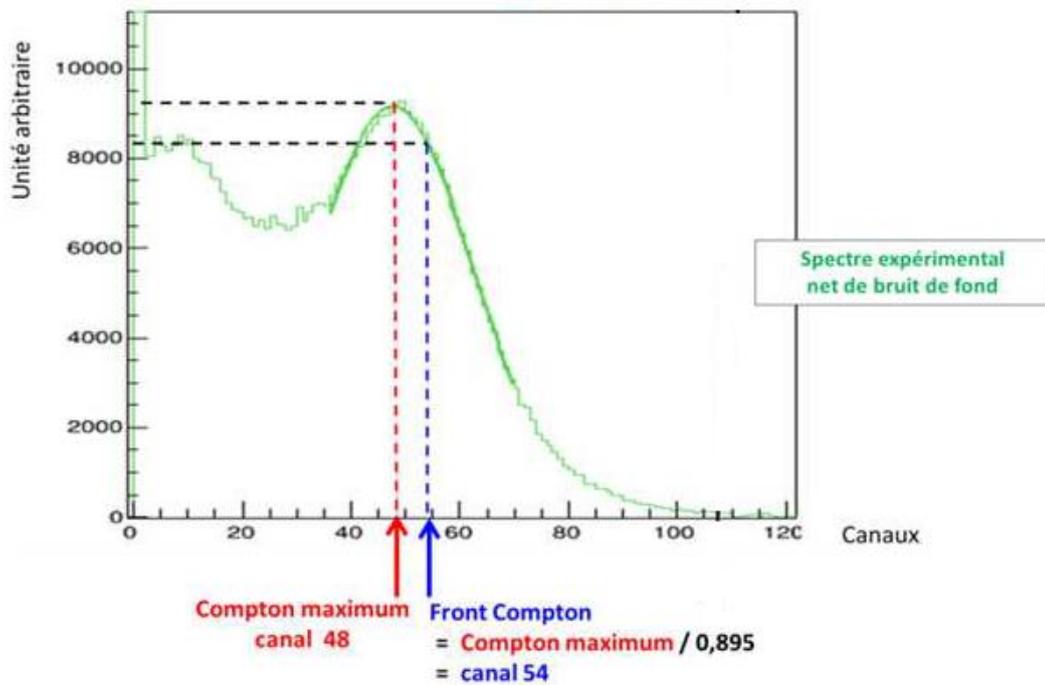


Figure 25. Mesure d'une source étalon de ^{137}Cs . Détermination de la valeur (en canaux) du Compton Maximum, pour remonter à la valeur du front Compton théorique [Simony2017].

Un ratio « Front Compton / Maximum » est déterminé pour l'ensemble des fronts Compton des mesures d'étalonnage (pour le calcul le ^{60}Co , une raie fictive moyenne à 1252 keV est considérée) :

Tableau 13. Ratios Compton / Maximum pour les 3 raies gamma considérées [Simony2017] [DeStefano2018].

Sources	Raie gamma (keV)	Front Compton théorique	Ratio Compton / Maximum
^{137}Cs	667	478	0.895
^{60}Co	1252	1040	0.923
AmBe	4439	4197	0.952

Les courbes ainsi que les coefficients d'étalonnage pour les 8 voies de détection (numérotées de 0 à 7) sont données dans la Figure 26 suivante :

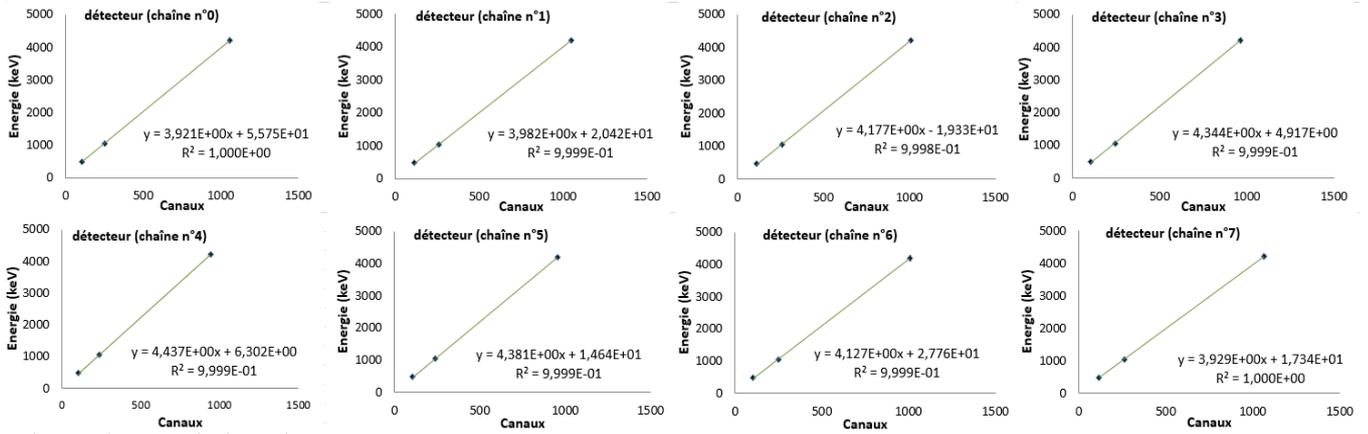


Figure 26. Courbes d'étalonnage en énergie des 8 scintillateurs au plastique PVT.

1.3 RESOLUTION TEMPORELLE

La caractérisation de la résolution temporelle du système (scintillateurs, photomultiplicateurs, numériseur) est essentielle pour la mesure du temps de vol des neutrons et rayonnements gamma à l'échelle de la nanoseconde. Elle est mesurée avec les deux rayonnements gamma en cascade du ^{60}Co . La configuration compacte présentée en Figure 27 est utilisée afin de bénéficier d'une bonne statistique de comptage. La source de ^{60}Co est placée au centre à trois hauteurs différentes : au niveau du sol, à mi-hauteur des détecteurs (50 cm au-dessus du sol) et en haut (à 100 cm comme sur la photo).



Figure 27. Disposition des détecteurs et de la source de ^{60}Co , pour la mesure des résolutions temporelles par couples de voies. Les détecteurs sont à un rayon de 15 cm de la source.

La mesure de coïncidence gamma est effectuée avec un détecteur de référence qui déclenche les fenêtres de coïncidence (*trigger*) pour les 7 autres voies. Le traitement des données s'effectue en deux étapes :

- sélection énergétique des impulsions se trouvant dans la région du front Compton du ^{60}Co ;
- construction des histogrammes des écarts temporels entre le détecteur déclencheur et les autres.

Des gaussiennes centrées sur l'origine des temps (0 ns) sont attendues et pour éviter de n'observer que des demi-gaussiennes sur les temps positifs, un câble plus court (9 m) est affecté au *trigger* qu'aux autres détecteurs (18 m) pour créer un décalage temporel de 45 ns avec une vitesse des électrons dans les câbles de l'ordre de $20 \text{ cm} \cdot \text{ns}^{-1}$ [Knoll1989] :

$$\Delta t = \frac{(1800 - 900) \text{ cm}}{20 \text{ cm}} \text{ ns} = 45 \text{ ns} \quad (21)$$

Les pics de coïncidence mesurés sont ainsi centrés vers 44 ns, voir Figure 28.

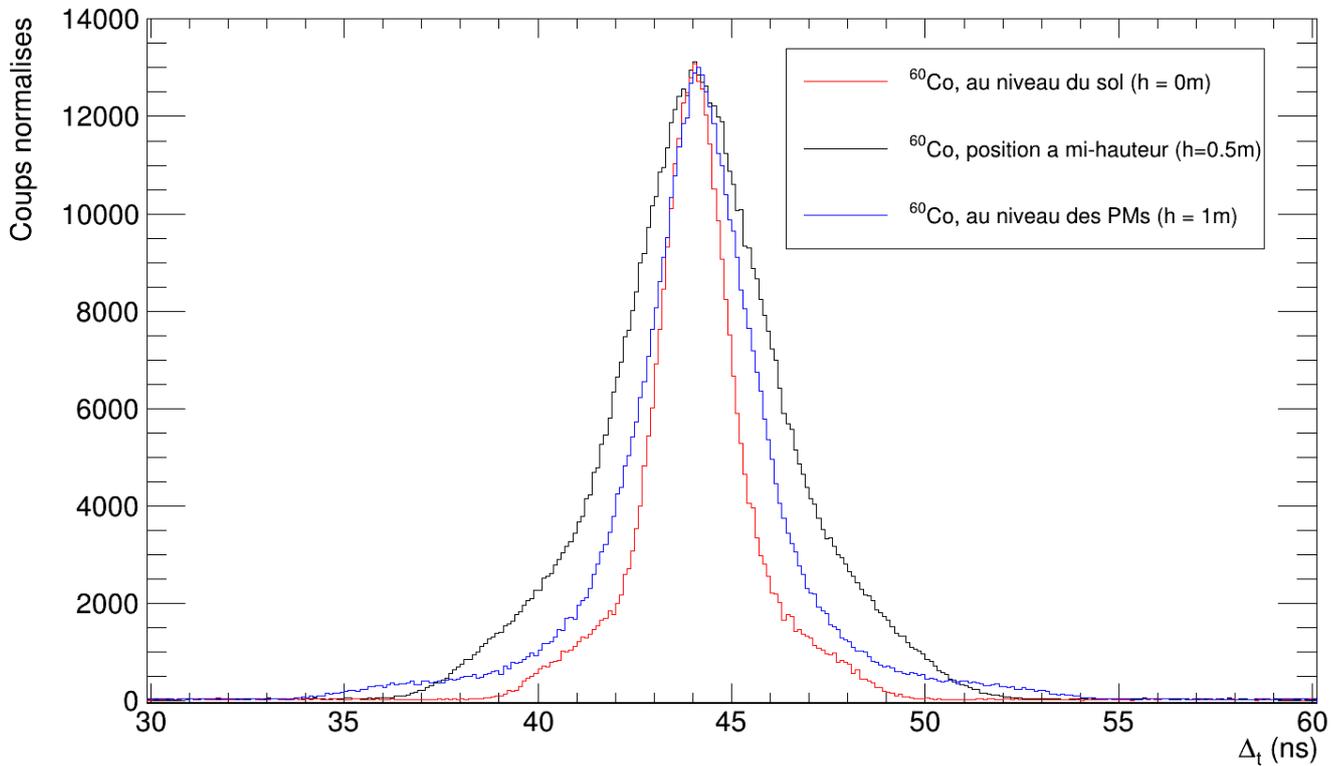


Figure 28. Histogrammes temporels normalisés des coïncidences $\gamma\gamma$ pour des mesures avec source de ^{60}Co en position haute (courbe bleue), à mi-hauteur (courbe noire) et au niveau du sol (courbe rouge).

Des élargissements non gaussiens au niveau des flancs sont présents, notamment dans les cas des mesures de la source à mi-hauteur et au niveau des photomultiplicateurs (PM). Ces élargissements s'expliquent par le fait que pour des interactions de rayonnements gamma en position haute ou centrée, la moitié des photons de scintillation produits partent en direction opposée au PM, traversent l'ensemble du scintillateur avant d'être rétrodiffusés vers le PM et collectés par la photocathode de manière non groupée. Au contraire, pour des interactions ayant lieu vers la base des scintillateurs (position source au sol, courbe rouge), la gaussienne présente moins d'élargissement au niveau des flancs car les photons de scintillation arrivent beaucoup plus groupés au PM. La largeur à mi-hauteur de l'histogramme résultant de la position centrée de la source est, de façon inattendue, plus importante que pour les cas précédents. Ceci pourrait provenir de la plus grande variété des lieux d'interaction possibles des deux rayonnements gamma du ^{60}Co dans les deux détecteurs impliqués dans la coïncidence. Lorsque la source se trouve en bas ou en haut des détecteurs, les angles solides de détection conduisent à détecter majoritairement des paires au niveau de la base des détecteurs ou bien des PMs, respectivement. De ce fait, les phénomènes de scintillation précédemment expliqués sont similaires pour les deux rayonnements de la paire et il n'y a que peu de décalage temporel entre les deux impulsions. Par contre, lorsque la source est en position centrée, un rayonnement peut se diriger vers le PM d'un détecteur et l'autre vers la base d'un autre détecteur, entraînant des décalages temporels plus importants. Le photon détecté vers les PM est en effet susceptible de générer un retard de quelques nanosecondes pour la collection de la scintillation, alors que le deuxième photon qui dépose son énergie au niveau de la base engendrera une collection plus rapide et groupée de la lumière de scintillation. Pour vérifier cette hypothèse, il serait possible de mener une étude avec le logiciel POLITRANI développé au Laboratoire de Mesures Nucléaires [Carasco2014], qui permet d'effectuer le transport de la scintillation dans les détecteurs organiques depuis les lieux d'interaction simulés avec MCNP PoliMi, ce qui n'est pas réalisé par ce dernier. Des ajustements sur la partie gaussienne des histogrammes sont aussi présentés en Figure 28 et les largeurs à mi-hauteur (LTMH ou *FWHM*, *Full Width at Half Maximum*) obtenues sont :

$$FWHM = 2\sqrt{2 \ln(2)} \sigma = 2.354 \sigma \quad (22)$$

$$FWHM_{H=100 \text{ cm}} = 2\sqrt{2 \ln(2)} \cdot 1,18 = \mathbf{2,78 \text{ ns}}$$

$$FWHM_{H=50 \text{ cm}} = 2\sqrt{2 \ln(2)} \cdot 1,78 = \mathbf{4,19 \text{ ns}}$$

$$FWHM_{H=0 \text{ cm}} = 2\sqrt{2 \ln(2)} \cdot 0,940 = \mathbf{2,21 \text{ ns}}$$

Dans le cadre des simulations, l'élargissement le plus pénalisant sera retenu ($FWHM_{H=50 \text{ cm}} \approx 4 \text{ ns}$) afin d'envelopper toutes les configurations possibles. Ces performances de résolution temporelle sont suffisantes dans le cadre des mesures de neutrons et de rayonnements gamma corrélés et de leurs temps de vol dans un système de mesure pour les colis de déchets.

Afin de vérifier les interprétations faites sur les élargissements des flancs des gaussiennes dans les grands volumes de détection, une étude complémentaire avec de petits scintillateurs au plastique PVT a été réalisée, de dimensions $10 \times 10 \times 10 \text{ cm}^3$, voir Figure 29 suivante :

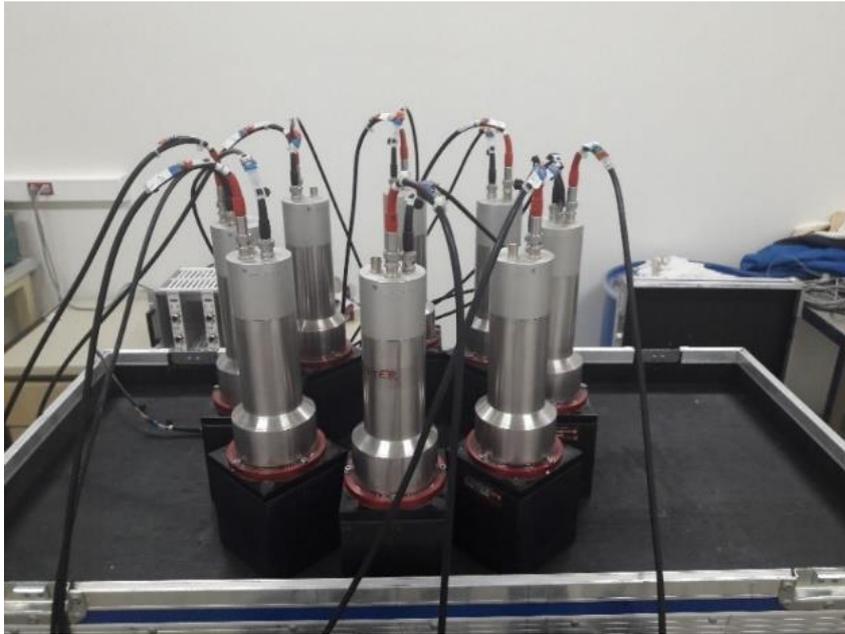


Figure 29. Système composé de petits scintillateurs au plastique PVT de $10 \times 10 \times 10 \text{ cm}^3$.

Puisque les scintillateurs sont de petite taille, une seule mesure est effectuée avec la source de ^{60}Co au centre (simplement posée au même niveau que la base des scintillateurs). L'histogramme temporel équivalent à la Figure 28 et donné, pour les petits scintillateurs, dans la Figure 30 suivante :

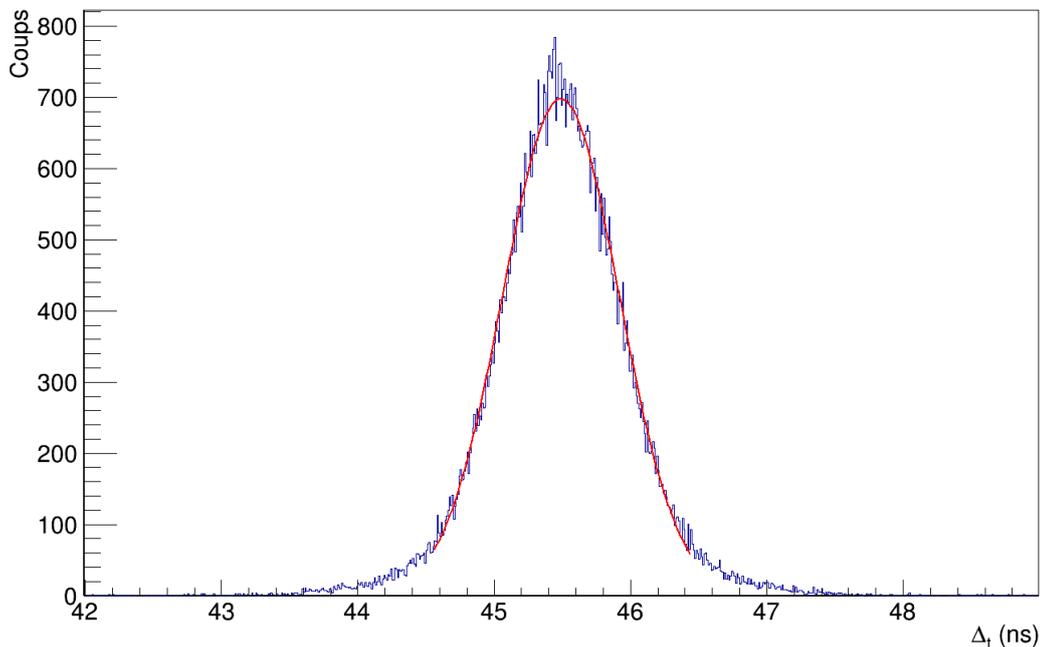


Figure 30. Histogramme temporel avec ajustement gaussien des coïncidences $\gamma\gamma$ pour une mesure avec la source ^{60}Co en position radiale centrée dans un dispositif de petits scintillateurs plastiques ($10 \times 10 \times 10 \text{ cm}^3$)

L'élargissement global de cette courbe est inférieur à celui obtenu précédemment avec les grands scintillateurs pour la mesure au niveau du sol, ce qui traduit une bien meilleure résolution temporelle qu'avec les grands scintillateurs :

$$FWHM_{\text{petits scintillateurs}} = 2 \sqrt{2 \ln(2)} \cdot 0,427 = \mathbf{1.01 \text{ ns}}$$

Par ailleurs, le phénomène d'élargissement des flancs de gaussienne est toujours présent mais il est moins marqué avec ces petits scintillateurs.

1.4 CODE D'ANALYSE DES DONNEES TRACNAR

Le logiciel CoMPASS propose 3 formats différents pour l'écriture des données :

- CSV (« *Comma Separated Value* ») ;
- ROOT (Objet de type « *TTree* » de l'ensemble de classes ROOT, qui est un arbre compressé de l'ensemble des données) [ROOT_CERN] [ROOT_TTree];
- Binaire.

Les enregistrements des données brutes sous la forme ROOT se présentent sous la forme d'un fichier unique. Les impulsions ne sont cependant pas rangées par ordre croissant des temps de détection (*timestamps*) calculés. En effet, lors d'une acquisition, les données sont écrites par paquets provenant d'une même voie électronique, où les impulsions sont triées par ordre croissant des temps d'arrivée, mais le passage au paquet d'impulsions suivant génère une discontinuité tel qu'illustré en Figure 31 :

n° de ligne	n° de la voie	Instant d'acquisition (en ps)	n° de canal	Energie (en keV)
60	0	1.182e+10	48	363
61	0	1.211e+10	37	323
62	0	1.224e+10	33	309
63	0	1.258e+10	32	306
64	0	1.335e+10	39	331
65	0	1.336e+10	170	825
66	0	1.364e+10	14	242
67	0	1.366e+10	99	544
68	0	1.374e+10	97	537
69	0	1.388e+10	167	786
70	0	1.439e+10	215	957
71	0	1.440e+10	119	615
72	0	1.462e+10	41	338
73	0	1.482e+10	86	427
74	0	1.499e+10	44	348
75	0	1.540e+10	179	829
76	0	1.561e+10	34	313
77	0	1.597e+10	64	420
78	0	1.604e+10	42	341
79	0	1.651e+10	335	1384
80	1	296514044	57	372
81	1	441807603	30	274
82	1	1.111e+09	21	242
83	1	1.133e+09	160	744
84	1	1.446e+09	66	484
85	1	1.597e+09	64	397
86	1	1.706e+09	93	502
87	1	1.718e+09	96	513
88	1	2.391e+09	341	1398
89	1	2.633e+09	218	953
90	1	2.924e+09	133	646

Figure 31. Illustration d'une cassure dans le rangement temporel des impulsions d'un TTree, intervenant entre deux paquets d'impulsions.

L'écriture directe des données brutes dans un TTree [ROOT_TTree] permet de bénéficier d'un format optimisé et compressé pour utiliser des espaces mémoires restreints et utiliser de manière efficace des algorithmes de traitements (filtres, tracés d'histogrammes, etc.) mais il est donc nécessaire d'effectuer au préalable un tri de l'ensemble des impulsions par temps d'arrivée croissant en vue de l'analyse des coïncidences. Une extraction de la totalité des données en mémoire vive est nécessaire pour effectuer ce tri et réarranger les données dans un nouvel arbre. Des problèmes de durée de traitement, voire de saturation de la mémoire vive, peuvent alors être rencontrés. L'option de sauvegarde directe des données brutes en TTree n'a donc pas été retenue.

Le format CSV d'écriture des données permet d'écrire un fichier pour chacune des voies de mesure, dans lequel les impulsions sont rangées par ordre croissant de temps de détection. Une inter comparaison des données dans chacun des fichiers permet alors de reconstruire un fichier unique avec les impulsions correctement classées, mais le format CSV est peu optimisé en terme d'espace mémoire, ce qui pose problème pour les acquisitions à grande quantité de données.

Le format d'écriture binaire des données est finalement choisi pour les acquisitions car il présente le même avantage que les fichiers CSV (un fichier trié pour chaque voie) et bénéficie d'une adéquation parfaite avec le langage machine pour une optimisation des écritures/lectures de données ainsi que des espaces mémoires.

Chaque impulsion numérisée est encodée et écrite sur 24 octets dans un fichier binaire, de la manière suivante :

- **Le numéro du numériseur** (16 bits, soit 2 octets). Dans notre cas, un seul numériseur d'impulsions est utilisé et cette information n'est pas nécessaire ;
- **Le numéro de la voie** qui a déclenché (16 bits, soit 2 octets). Cette information est cruciale pour identifier le détecteur dans lequel l'interaction s'est produite, notamment pour le rejet de la diaphonie entre détecteurs comme on le verra plus loin ;
- **Le timestamp** (64 bits, soit 8 octets). Il est calculé par la méthode CFD (« *Constant Fraction Discriminator* ») à partir de l'échantillonnage de chaque impulsion analogique toutes les 2 ns. Il permet de déterminer précisément l'instant de déclenchement de l'impulsion sans être affecté par son amplitude. Cette information est cruciale pour la mesure de temps de vol et le tri des coïncidences utiles et parasites comme nous le verrons dans ce chapitre ;
- **L'énergie** (16 bits, = 2 octets). L'intégration de la charge dans une fenêtre donnée (60 ns ici) conduit à un numéro de canal proportionnel à la quantité de lumière de scintillation, elle-même proportionnelle à

- l'énergie déposée suite à l'interaction d'une particule. L'étalonnage en énergie permet alors de convertir les numéros de canaux en keVee ou MeVee. Cette information est nécessaire pour l'application d'un seuil de coupure bas en énergie, mais nous ne l'utilisons pas pour faire une spectrométrie des impulsions ;
- **L'énergie « short »** (16 bits, = 2 octets), qui correspond à la charge intégrée sur le temps de montée de l'impulsion pour l'application de la méthode PSD (*Pulse Shape Discrimination*, discrimination par la forme des impulsions), non utilisée dans notre cas avec des scintillateurs en plastique PVT ; ce paramètre est ignoré ;
 - **Le « flag »** (16 bits, = 2 octets), dont le code permet d'identifier des événements marquants (empilements, temps morts, faux événements, etc.). Cette information n'est pas utilisée pour nos premiers essais car les configurations montrées sont au plus simple (faibles taux de comptages, empilements et temps mort négligeables) ;
 - **Le nombre d'échantillonnage** (32 bits, = 4 octets), qui est un paramètre constant correspondant au nombre d'échantillons des impulsions numérisées sur 182 ns par intervalles de 2 ns, soit 91 échantillons. Cette information n'est pas utilisée.

L'ensemble de classes ROOT [ROOT_CERN] développées en C++ rassemble tous les outils nécessaires aux traitements de données massives. Le parcours des données écrites dans un format compressé, au sein d'un objet de type TTree, est optimisé pour un chargement partiel dans la mémoire vive de l'ordinateur afin de ne pas la saturer. Le TTree est optimisé pour filtrer les données, effectuer des opérations mathématiques et des analyses statistiques, ou créer des histogrammes.

Dans un premier temps, le format brut binaire des données est utilisé pour les trier par temps d'arrivée croissant, puis les données ordonnées sont écrites dans un TTree pour l'analyse avec le code TraCNAR (« *Tracking Coincidence of Neutrons and gamma-rays with ROOT* ») spécifiquement développé dans ce but avec les différentes étapes suivantes :

1. lecture des données binaires et réécriture par instants d'acquisition croissants dans un TTree ;
2. application de la conversion canal/énergie et du seuil en énergie ;
3. rejet de la diaphonie (coïncidences parasites générées par la diffusion d'une particule dans plusieurs détecteurs, cf. §4.3 du chapitre 1) ;
4. application de la méthode du registre à décalage [Ensslin1991_11] avec tracé de la courbe Rossi-alpha et écriture des différents registres de comptage des multiplicités (ordre 0,1, 2, 3, ...);
5. application d'une nouvelle méthode de traitement des données par discrimination temporelle des coïncidences utiles et parasites introduite au §2.2.

Le détail des étapes 1 à 3 est donné en annexe 1 et les étapes 4 et 5 sont explicitées dans les paragraphes suivants consacrés à l'analyse des données expérimentales.

2. ANALYSE DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

2.1 METHODE DU REGISTRE A DECALAGE

A partir de la liste de tous les temps de détection (*timestamps*) ordonnés par ordre croissant, la représentation des intervalles de temps entre paires d'impulsions dans un histogramme constitue la courbe de Rossi-alpha, dont un exemple est donné en Figure 32 :

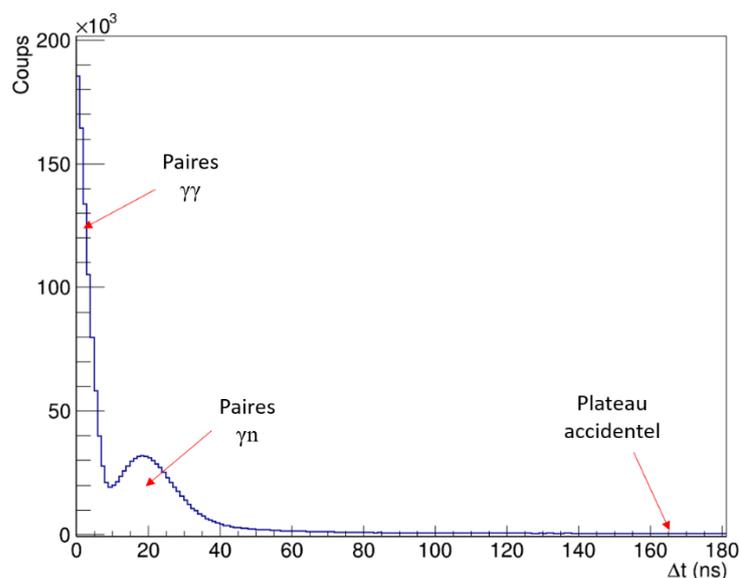


Figure 32. Courbe de Rossi-alpha pour une mesure de 5 min d'une source de ^{252}Cf (228 kBq).

Cette courbe de Rossi-alpha est similaire à celle obtenue avec des compteurs hélium 3 (Figure 2 du chapitre 1), à ceci près que :

- l'échelle de temps est la nanoseconde, contre la microseconde pour des compteurs à hélium 3, ce qui minimise le nombre de coïncidences accidentelles ;
- la sensibilité des scintillateurs plastiques aux rayonnements gamma ainsi que la capacité de ces détecteurs à discriminer temporellement un rayonnement gamma et un neutron corrélé engendrent la présence de deux régions notoires :
 - o un premier pic aux intervalles courts correspondant aux paires $\gamma\gamma$ corrélées ;
 - o une « bosse » plus large aux intervalles de temps plus longs typique d'une paire γn corrélée avec une distribution large des temps de vols neutroniques liée au spectre des neutrons de fission.

Afin de prendre en compte l'ensemble des coïncidences réelles, la fenêtre de coïncidences « R+A » du registre à décalage est fixée aux 100 premières nanosecondes et la fenêtre accidentelle « A » entre 1000 et 1100 ns, avec un délai de 10 fois la fenêtre de coïncidences. Les comptages des multiplicités détectées (de M₀ à M₇), ainsi que les calculs des taux de comptage des singulets, doublets, et triplets (S, D et T) tels que décrit dans le §2.1.4 du chapitre 1, sont donnés dans le Tableau 14 pour le bruit de fond ainsi que pour les 3 sources d'étalonnage :

Tableau 14. Nombre d'évènements détectés dans les différents ordres de multiplicités (après soustraction du bruit de fond) et taux de singulets, doublets, et triplets pour le bruit de fond et les mesures de 5 min corrigées du bruit de fond, sans application du rejet de la diaphonie à ce stade.

	Bruit de fond		²⁵² Cf		AmBe		⁶⁰ Co	
	R+A	A	R+A	A	R+A	A	R+A	A
M0	2 259 505	2 349 237	3 379 137	4 479 459	15 577 017	16 671 802	53 638 186	57 771 864
M1	89 387	1 860	857 974	8 310	1 141 198	102 194	4 947 762	989 025
M2	2 066	64	209 237	1 296	59 474	5 790	251 249	81 991
M3	130	2	38 098	257	2 312	253	9 079	3 516
M4	46	1	4 806	42	67	14	239	97
M5	20	0	401	5	-9	0	-11	2
M6	8	0	18	1	-3	0	-7	0
M7	2	0	-1	0	-2	1	-2	0
S	7 837,2 s ⁻¹		14 965,6 s ⁻¹		55 933,5 s ⁻¹		196 155,0 s ⁻¹	
D	307,5 s ⁻¹		4 667,6 s ⁻¹		3 842,5 s ⁻¹		14 381,3 s ⁻¹	
T	10.1 s ⁻¹		1 174,8 s ⁻¹		174,9 s ⁻¹		342,2 s ⁻¹	

Les mesures ont été effectuées avec les sources séparées les unes des autres pour limiter le temps mort (cf. §4), mais nous les considérons ici comme additives pour calculer le rapport entre le signal utile (²⁵²Cf) et les signaux parasites (AmBe, ⁶⁰Co), noté RSB (Ratio Signal sur Bruit) pour chaque composante (singulets, doublets et triplets). Les valeurs données ci-dessous montrent l'amélioration du RSB en passant des singulets aux doublets puis aux triplets :

$$RSB_S = \frac{S_{252Cf}}{S_{AmBe} + S_{60Co}} = \frac{14966}{55933 + 196155} = 0.06 \quad (23)$$

$$RSB_D = \frac{D_{252Cf}}{D_{AmBe} + D_{60Co}} = \frac{4668}{3843 + 14381} = 0.3 \quad (24)$$

$$RSB_T = \frac{T_{252Cf}}{T_{AmBe} + T_{60Co}} = \frac{1175}{175 + 342} = 2.3 \quad (25)$$

Ceci est dû au fait que les premiers ordres de multiplicité (M₀ et M₁) sont fortement peuplés pour les sources de ⁶⁰Co et d'AmBe, du fait de leurs émissions corrélées, respectivement $\gamma\gamma$ et γn (Figure 22). Par contre, à partir de

M_2 , la source de ^{252}Cf représente la majeure partie du signal en raison de la grande multiplicité des neutrons et rayonnements gamma prompts de fission spontanée.

2.2 METHODE INNOVANTE DE DISCRIMINATION DES COÏNCIDENCES UTILES ET PARASITES

Il est possible de compléter l'analyse effectuée avec la méthode du registre à décalage, en ne considérant pas seulement les dénombrements des multiplicités, mais aussi les intervalles temporels entre les impulsions des coïncidences comprenant au minimum 3 impulsions (multiplicités M_2 , M_3 , etc.) [Bottau2019] [Bottau2021]. A l'image de la courbe de Rossi-alpha qui permet de mettre en évidence des différences entre les paires $\gamma\gamma$ et γn , nous construisons un histogramme des intervalles temporels, mais à deux dimensions., voir Figure 33.

Ceci permet d'identifier différentes natures de coïncidences triples (par exemple, $\gamma\gamma\gamma$, $\gamma\gamma n$, $\gamma n n$, etc.). Cette méthode permet d'isoler les coïncidences qui comportent au minimum deux neutrons pour mieux discriminer les événements utiles de fissions spontanées des sources de coïncidences parasites de type (α, n) , qui émettent des neutrons célibataires, ou γ - γ comme le ^{60}Co .

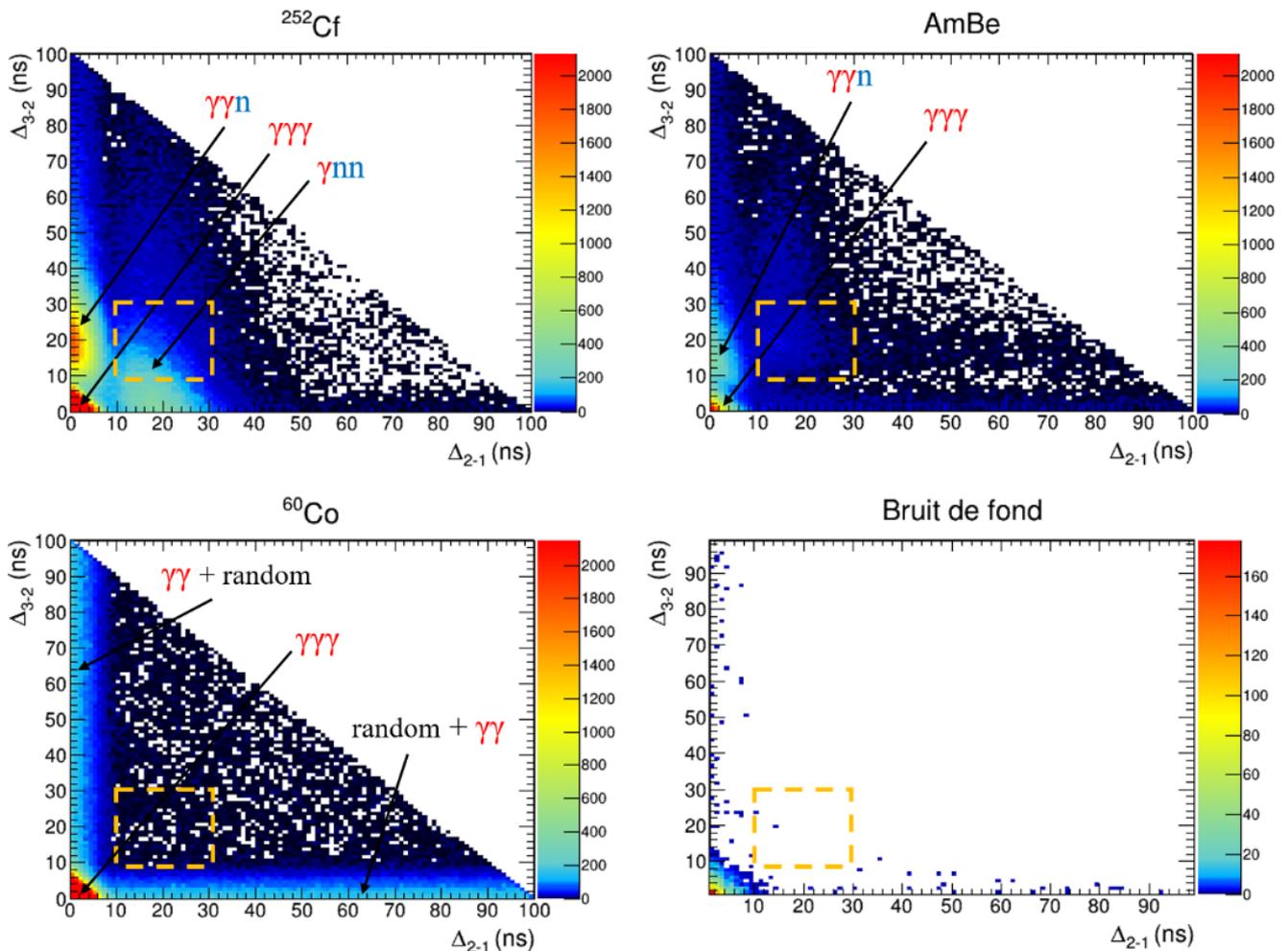


Figure 33. Histogrammes expérimentaux à deux dimensions des intervalles temporels entre les impulsions des coïncidences comprenant au moins 3 impulsions, dans des conditions identiques au Tableau 14. Le premier axe Δ_{2-1} représente l'intervalle temporel entre la 1^{ère} et la 2^{ème} impulsion de la coïncidence, le second Δ_{3-2} entre la 2^{ème} et la 3^{ème} impulsion. Une échelle de couleur permet de visualiser les régions les plus peuplées (gamme identique pour les sources de ^{252}Cf , ^{60}Co et AmBe pour faciliter la comparaison). Le pas de segmentation de l'histogramme est de 1 ns sur chaque axe.

Afin de comprendre les différentes zones identifiables sur chacun des histogrammes, il est important de connaître les ordres de grandeur des vitesses des neutrons détectables. Le spectre des neutrons de fission spontanée d'une source de ^{252}Cf obéit à un spectre de Watt ou de Maxwell (cf. Figure 1 du Chapitre 1), c'est-à-dire une énergie comprise entre 0 et approximativement 10 MeV [Ensslin1991_11]. Comme abordé précédemment dans le §3.3.2 du Chapitre 1, à énergies déposées égales via un électron ou un proton, un rayonnement gamma n'induit pas la même quantité de photons de scintillation qu'un neutron car le proton restitue une partie de son énergie sous forme non-radiative (*quenching*). Afin d'établir le lien entre l'énergie du neutron déposée par le proton (E_n en MeV) et la quantité de photons de scintillation équivalente (en MeVee) que déposerait un électron de même énergie, du fait

de son meilleur rendement de scintillation, une loi empirique polynomiale est utilisée [Pozzi2004] dans le cas d'une interaction sur un noyau d'hydrogène (26) ou sur un noyau de carbone (27) :

$$E(\text{Mevee}) = 0.0364 * E_n^2 + 0.125 * E_n \quad (26)$$

$$E(\text{Mevee}) = 0.02 * E_n \quad (27)$$

Un neutron doit donc avoir une énergie supérieure à 670 keV pour que le proton de recul ait une chance de déposer plus de 100 keVee (probabilité uniforme entre 0 et 670 keV par diffusion élastique sur le noyau d'hydrogène), seuil de coupure bas des mesures, ou 5 MeV pour une diffusion sur un noyau de carbone, processus qui contribue donc très peu au signal. La loi relation entre l'énergie et la vitesse des neutrons permet d'estimer l'intervalle des vitesses des neutrons détectables :

$$v_{n(0.67 \text{ MeV})} = 1.1 \text{ cm. ns}^{-1} \quad (28)$$

$$v_{n(10 \text{ MeV})} = 4.3 \text{ cm. ns}^{-1} \quad (29)$$

En ce qui concerne les rayonnement gamma, la vitesse est :

$$v_\gamma \approx 30 \text{ cm. ns}^{-1} \quad (30)$$

Avec une distance radiale source-détecteurs de 35 cm, le temps de vol (noté TOF pour *Time Of Flight*) pour les plus courts parcours est donc :

$$TOF_{n(\text{radial})} \approx [8 - 31] \text{ ns} \quad (31)$$

$$TOF_{\gamma(\text{radial})} \approx 1 \text{ ns} \quad (32)$$

En réalité, la longueur de 100 cm des détecteurs conduit à des trajets plus longs en oblique ce qui rallonge significativement les temps de vol, notamment dans le cas des neutrons. La résolution temporelle du système, estimée précédemment à 4 ns (§1.3), réduit par ailleurs significativement le gap entre les temps de vol neutroniques et gamma : la région proche de l'origine des histogrammes de la Figure 33, qui correspond à des coïncidences de type $\gamma\gamma\gamma$ (intervalles Δ_{2-1} et Δ_{3-2} très courts), s'étend ainsi jusqu'à 5 ns. Dans le cas de la source de ^{252}Cf , cette région est densément peuplée du fait de la forte multiplicité des rayonnements gamma prompts de fission, proche de 8 [Ensslin1991_Chap11]. La région est également très peuplée avec le ^{60}Co car la diffusion Compton entre détecteurs (diaphonie) peut augmenter l'ordre de coïncidence d'une paire $\gamma_{1.173\text{MeV}} - \gamma_{1.332\text{MeV}}$. L'historgramme du ^{60}Co montre par ailleurs un peuplement dense et uniforme le long des axes Δ_{2-1} et Δ_{3-2} . Ces bandes sont principalement dues à la détection d'une paire $\gamma\gamma$ corrélée qui génère l'intervalle de temps court, avec une impulsion non corrélée (coïncidence accidentelle) qui conduit à cette distribution uniforme le long des axes. Le long de l'axe Δ_{2-1} , c'est d'abord l'impulsion non corrélée (accidentelle) avec la paire corrélée qui déclenche la fenêtre de coïncidence (*random* + $\gamma\gamma$, Figure 33). Le long de l'axe Δ_{3-2} , c'est l'un des deux rayonnements gamma corrélés qui déclenche la fenêtre de coïncidence, suivi de près par le deuxième rayonnement corrélé, puis par l'impulsion accidentelle ($\gamma\gamma$ + *random*). Ces bandes apparaissent également, mais de manière moins marquée, dans le cas de la source AmBe, bien que celle-ci n'émette pas de rayonnements gamma corrélés, à cause de la diaphonie de diffusion Compton du rayonnement gamma de 4,439MeV entre deux détecteurs.

Une autre région remarquable est celle des coïncidences de type $\gamma\gamma n$, observée dans le cadre des sources mixtes neutron-gamma (^{252}Cf et AmBe). Ces événements sont proches de l'axe Δ_{3-2} car la première paire $\gamma\gamma$ détectée présente un intervalle de temps Δ_{2-1} court tandis que la deuxième paire γn correspond à un intervalle Δ_{3-2} plus long, voir Figure 32 (courbe de Rossi-alpha), majoritairement jusqu'à 30 ns mais potentiellement jusqu'à 60 ns en cas de trajectoires en oblique comme évoqué précédemment ou d'interactions des neutrons dans l'environnement (diffusions sur le sol, les murs, etc.) avant leur détection. Même si la source AmBe n'émet que deux particules corrélées, le neutron et un rayonnement gamma de 4,439 MeV dans 57 % des réactions (α, n), la région $\gamma\gamma n$ est notoirement peuplée à cause des diaphonies de diffusion Compton.

Enfin, la région la plus importante en termes de signal utile est celle des coïncidences de type $\gamma n n$, très peuplée dans le cas de la source de signal utile ^{252}Cf mais beaucoup moins pour la source parasite AmBe. La première paire γn de la coïncidence génère un écart temporel Δ_{2-1} conforme à la courbe de Rossi-alpha (Figure 32). Les caractéristiques temporelles de la deuxième paire $n n$ de la coïncidence obéissent à une loi de décroissance exponentielle telle qu'attendue dans une distribution de Rossi-alpha avec des détecteurs uniquement sensibles aux neutrons (cf. Figure 2 du chapitre 1). Ces intervalles temporels (Δ_{3-2}) sont présentés grâce à une projection en une dimension de l'historgramme 2D dans le cas de la source de ^{252}Cf (Figure 33), en Figure 34 :

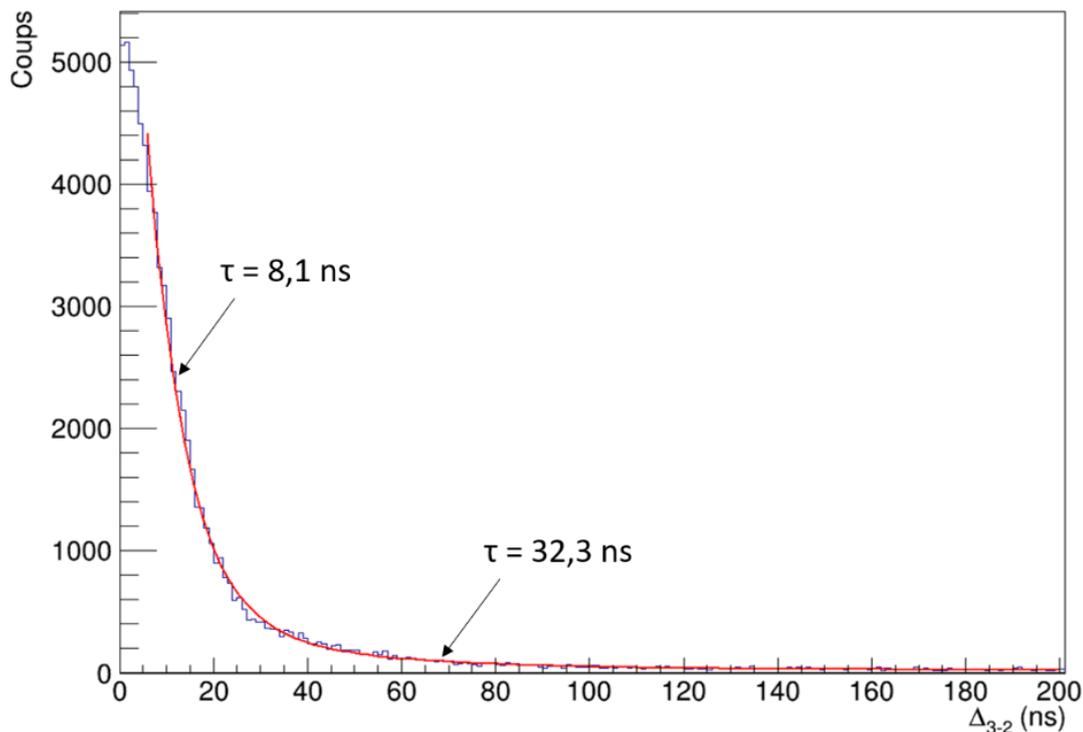


Figure 34. Intervalles temporels Δ_{3-2} pour la mesure avec la source de ^{252}Cf en sélectionnant les paires formées par les deuxième et troisième impulsions d'une coïncidence triple, lorsque Δ_{2-1} est compris entre 10 ns et 30 ns. L'ajustement exponentiel est réalisé entre 10 ns et 200 ns.

Les détecteurs étant sensibles aux neutrons et aux rayonnements gamma, les faibles écarts temporels entre les deuxième et troisième impulsions d'une coïncidence triple, selon l'axe Δ_{3-2} , peuvent aussi être des coïncidences de rayonnements gamma ou bien une diaphonie de diffusion Compton d'un rayonnement gamma, sans corrélation avec la première impulsion de la coïncidence. Nous avons donc exclu les 10 premières nanosecondes pour réaliser l'ajustement exponentiel de la Figure 34, en vue d'isoler au maximum les paires neutroniques. L'ajustement est également optimisé en proposant deux constantes de décroissance [Ensslin1991_11], et correspond effectivement à la distribution mesurée. La première constante de décroissance (8 ns) est liée au temps de détection moyen des neutrons dans le système, en incidence directe sur les détecteurs. La deuxième constante de décroissance (32 ns) est due aux diffusions des neutrons dans l'environnement extérieur (casemate DANAIDES). Par simulation, il sera possible de ne considérer que les neutrons pour le tracé de cet histogramme et il sera donc possible de vérifier ce comportement de manière plus précise. Dans le cas d'une paire de deux neutrons avec des énergies et donc des vitesses proches, l'écart temporel sur l'axe Δ_{3-2} est faible (cas le plus probable, cf. §3.5) mais cet écart peut augmenter significativement si les vitesses des deux neutrons seront très différentes (vitesses extrêmes de 1,1 et 4,3 $\text{cm}\cdot\text{ns}^{-1}$). Cet écart temporel entre les deux neutrons est majoritairement compris entre 0 et 30 ns mais peut atteindre 60 ns. La source AmBe présente quelques coups dans la région d'intérêt du signal utile marquée en pointillés sur la Figure 33 (Δ_{1-2} et Δ_{3-2} compris en 10 et 30 ns) car le neutron de la réaction (α, n) est capable de générer deux impulsions dans deux détecteurs différents par diaphonie de diffusion élastique. La source de ^{60}Co montre aussi quelques événements dans cette région qui ne sont pas dues à la diaphonie de diffusion Compton (intervalles de temps trop longs pour des rayonnements gamma) mais à des coïncidences accidentelles de 3 impulsions en raison du fort taux de comptage total enregistré dans le cadre de cette mesure ($2\cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$). Ces coïncidences accidentelles triples représentent un plateau constant sur l'ensemble de l'histogramme (à l'image des courbes de Rossi-alpha) et leur soustraction sera abordée au chapitre 3.

La région des coïncidences $\gamma n n$ présente le plus d'intérêt dans le cadre de cette étude car elle permet la meilleure discrimination entre événements de fissions spontanées et parasites. Les limites de la région d'intérêt indiquée en pointillés dans la Figure 33 ($10 \text{ ns} \leq \Delta_{2-1} \leq 30 \text{ ns}$; $10 \leq \Delta_{3-2} \leq 30 \text{ ns}$) permettent d'éviter la bande $0 \text{ ns} \leq \Delta_{3-2} \leq 10 \text{ ns}$ dans laquelle se trouvent de nombreux événements parasites en cas de présence d'une source de rayonnements gamma corrélés comme le ^{60}Co ou bien d'une source (α, n).

La plupart des événements parasites (AmBe, ^{60}Co) dans cette zone correspondent à des diffusions de neutrons ou rayonnements gamma entre détecteurs qui peuvent être rejetés en grande partie en paralysant les détecteurs voisins de celui qui déclenche une coïncidence, pendant une certaine durée. Par exemple pour un rejet pendant 60 ns, durée observée pour certaines diaphonies de diffusion neutronique pour l'AmBe en Figure 33 (nous y reviendrons plus en détail avec l'aide de la simulation numérique au § 3.5), on obtient la Figure 35 :

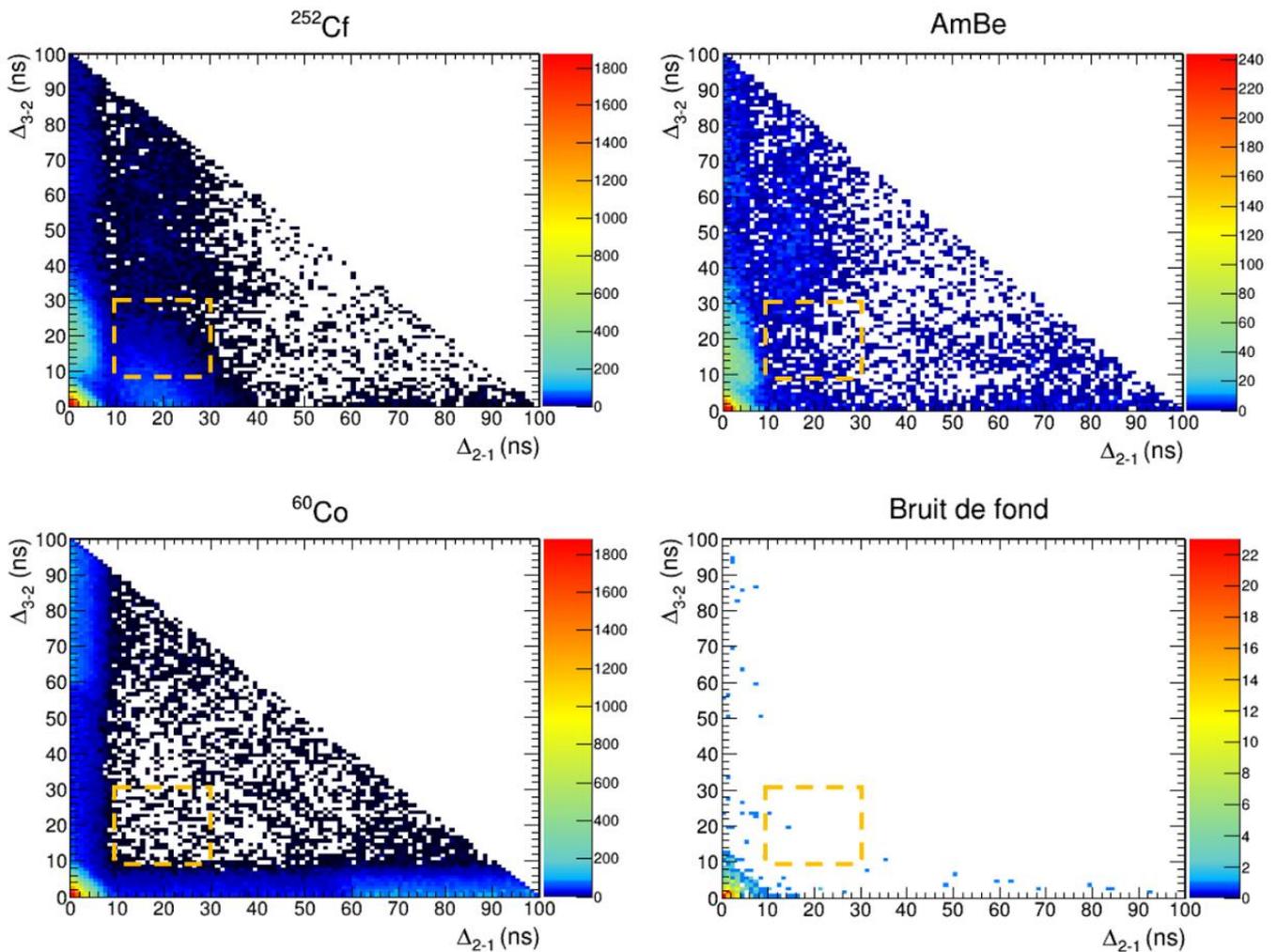


Figure 35. Histogrammes expérimentaux des mesures présentées en Figure 33, avec application du rejet de la diaphonie sur des intervalles temporels de 60 ns.

La paralysie des détecteurs voisins permet de rejeter efficacement les événements parasites de la source AmBe dus à la diaphonie dans la zone d'intérêt du signal utile (en pointillé dans la Figure 35). Il est à noter cependant que la diaphonie entre détecteurs non-voisins reste présente pour des intervalles de temps supérieurs à 30 ns (temps de vol des neutrons plus important). Afin d'évaluer les performances de ce rejet, le Tableau 15 donne les comptages dans la région d'intérêt sans et avec rejet de la diaphonie pendant différentes durées :

Tableau 15. Comptages dans la région d'intérêt sans et avec rejet de la diaphonie par paralysie des détecteurs voisins pendant 10, 30 et 60 ns. Le RSB est celui défini en (5).

Source radioactive	Comptages obtenus dans les ROI			
	Sans rejet de diaphonie	Avec rejet de diaphonie		
		$\Delta t \leq 10$ ns	$\Delta t \leq 30$ ns	$\Delta t \leq 60$ ns
^{252}Cf	28 767	24 769	7 693	5 022
AmBe	4 698	4 447	702	472
^{60}Co	951	848	381	243
BDF	3	3	1	0
RSB	5,1	4,7	7,1	7

Sans rejet de la diaphonie le RSB est déjà meilleur que celui obtenu avec les triplets de la méthode du registre à décalage, avec 2,3 dans (5) contre 5,1 ici. Ce Tableau 15 indique également que le rejet de la diaphonie par paralysie des détecteurs voisins pendant 10 ns est insuffisant. En effet, la distance entre deux détecteurs voisins (centre à centre) est d'environ 30 centimètres, or des neutrons ayant déjà effectué un premier dépôt d'énergie dans un détecteur ont rarement une vitesse résiduelle supérieure à 3 $\text{cm}\cdot\text{ns}^{-1}$ et ne déclenchent donc pas une 2^{ème}

impulsion dans un détecteur voisin avant 10 ns. Au contraire, la paralysie des voisins pendant 60 ns supprime efficacement les coïncidences parasites de l'AmBe avec 472 coups résiduels sur 4698 au total. Les coïncidences du ^{60}Co sont également largement réduites (de 951 à 243) et le ratio signal sur bruit obtenu est amélioré. Cependant, ce rejet de diaphonie engendre également la perte de nombreuses coïncidences utiles de fissions spontanées (de 28767 à 5022). La paralysie pendant 30 ns est un bon compromis entre rejet de la diaphonie et statistique de comptage utile avec un ratio signal sur bruit de 7,1.

3. APPORT DE LA SIMULATION NUMERIQUE

3.1 LE CODE MCNPX-POLI MI

Afin de mieux comprendre et analyser les données mesurées, notamment les types de particules (neutron ou gamma) dans les coïncidences triples, des simulations de type Monte-Carlo ont été réalisées avec le code MCNPX-PoliMi présenté dans le §4.2 du Chapitre 1 [MCNPX_PoliMi]. Ces simulations sont précieuses car les scintillateurs au plastiques PVT utilisés n'ont pas la possibilité de discriminer les natures de particules par PSD et aucun détecteur ne permet en outre de différencier les coïncidences réelles dues aux fissions spontanées de celles dues à la diaphonie. Par simulation, par contre, ces informations sont présentes dans les fichiers de résultats (voir Figure 16 au Chapitre 1).

3.2 MODELISATION DE LA GEOMETRIE ET DES SOURCES

La géométrie de mesure modélisée (Figure 36) prend en compte l'environnement extérieur de la casemate DANAIDES avec des épaisseurs de béton de 1 m au niveau du sol, du plafond et des murs. Le support des sources (faible masse), les photomultiplicateurs, les câbles, ainsi que les divers objets présents dans la casemate lors de la campagne expérimentale ont été négligés pour simplifier le modèle.

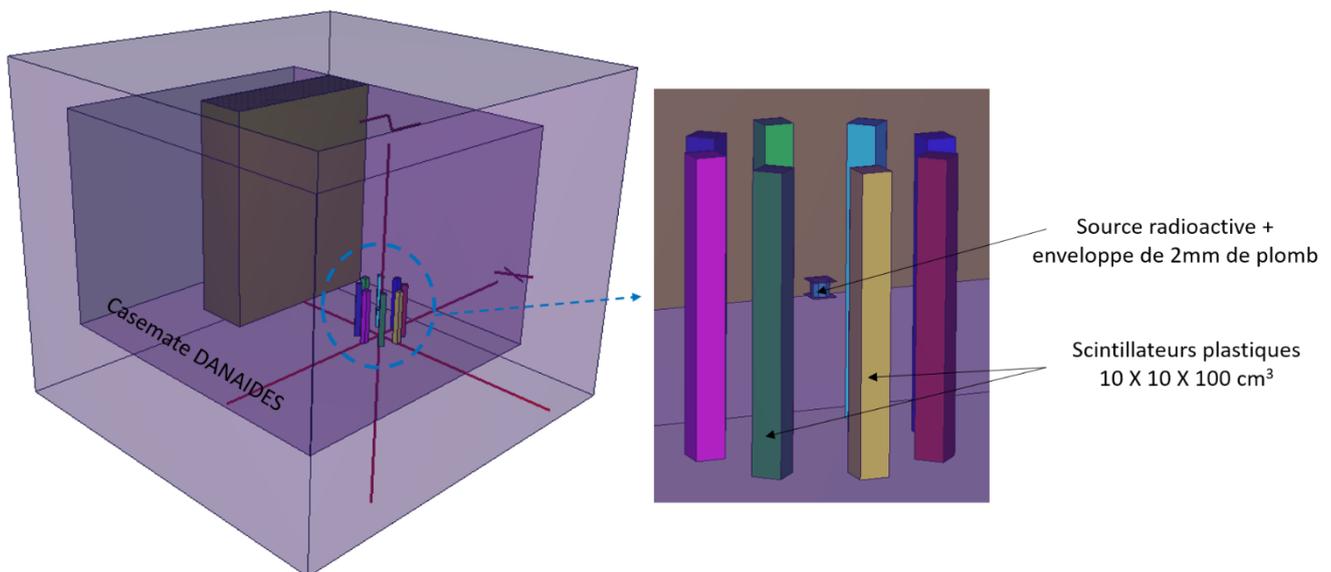


Figure 36. Modèle de la géométrie de mesure pour les simulations avec MCNPX-PoliMi.

Les 3 sources radioactives ont été simulées à l'aide des cartes *SDEF* de MCNPX et *IPOL* propre à l'extension PoliMi de MCNPX [MCNPX_PoliMi] :

- la source AmBe simulée avec le paramètre IPOL (1) -11 ne génère que les désintégrations α suivies de réactions (α, n) pour limiter les temps de calcul. PoliMi génère aussi avec le neutron un rayonnement gamma corrélé de 4439 keV dû à la désexcitation du ^{12}C , dans 57% des réactions ;
- la source de ^{60}Co simulée avec IPOL (1)(2) 6028 6027 émet les deux rayonnements gamma de 1173 et 1332 keV émis en cascade par désexcitation du ^{60}Ni , noyau fils de la désintégration β ;
- la source de ^{252}Cf est simulée par deux calculs MCNPX-PoliMi distincts car elle nécessite deux termes sources :
 - o le premier défini par IPOL (1) 10 permet de générer de façon corrélée les rayonnements gamma et neutroniques prompts des fissions spontanées (cf. Figure 21) ;
 - o le second permet de prendre en compte les rayonnements gamma retardés émis par les produits de fission (Figure 21) via l'argument *ERG* de la carte *SDEF* qui permet d'entrer la distribution des énergies des rayonnements gamma émis. Les rayonnements retardés ne présentant pas de corrélation temporelle (à l'échelle de la mesure des coïncidences entre particules prompts), ils sont simplement simulés avec MCNPX, sans les fonctionnalités spécifiques de PoliMi.

Le spectre des rayonnements gamma retardés et leur nombre moyen sont très dépendants de l'intervalle temporel considéré après la fission. Une synthèse d'études réalisée par le *Sandia National Laboratory* met à disposition des valeurs d'énergies totales de rayonnements gamma retardés par fission ainsi que leurs multiplicités [Lane2015]. On retrouve ainsi des énergies totales et multiplicités d'approximativement 7 MeV et 7 rayonnements gamma retardés par fission induite ou spontanée, respectivement, pour les isotopes de l'uranium ^{233}U , ^{235}U et ^{238}U , ainsi que pour le ^{239}Pu . Ces valeurs correspondent à des énergies moyennes d'approximativement 1 MeV par rayonnement gamma retardé [Lane2015]. En première approximation, ne disposant pas d'informations plus précises dans le cas du ^{252}Cf et des isotopes pairs du plutonium, nous considérons pour cette thèse que le spectre des rayonnements gamma retardés ainsi que leur multiplicité moyenne par fission spontanée sont les mêmes que ceux des rayonnements gamma prompts. Pour connaître cette distribution, une simulation MCNPX-PoliMi avec uniquement une source ponctuelle de ^{252}Cf au centre d'une géométrie sans matériaux (vide) a été réalisée. Le spectre en énergie des rayonnements gamma prompts de fission spontanée est calculé à l'aide d'un tally F2 (flux) sur une surface de contrôle autour de la source, voir Figure 37 :

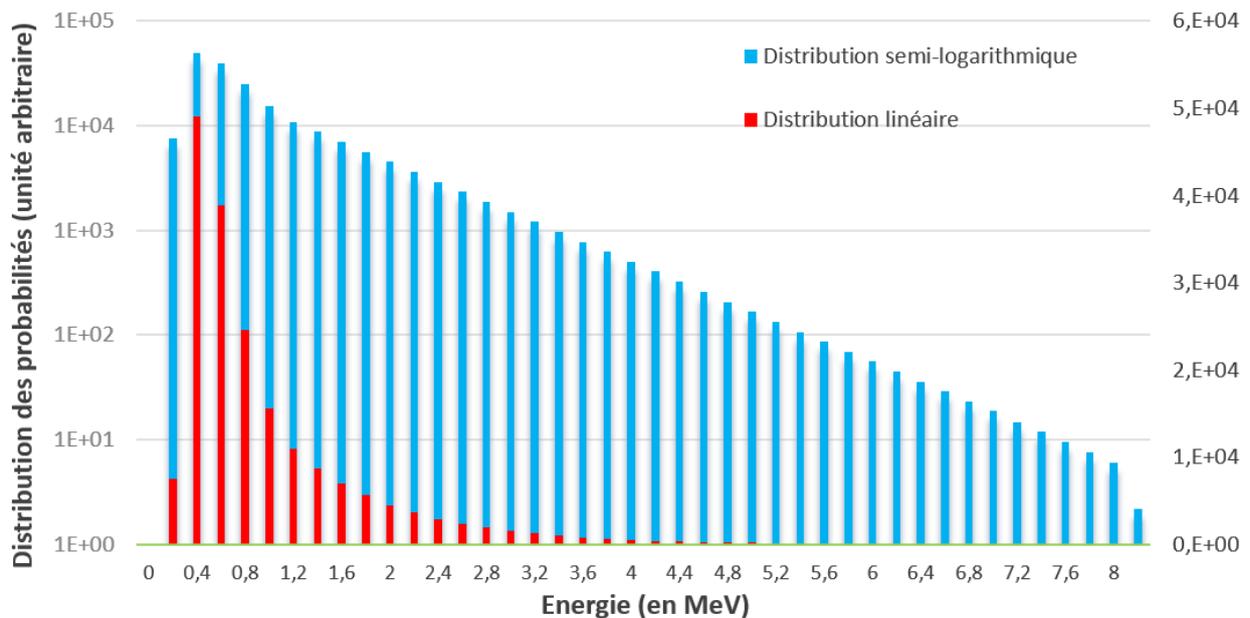


Figure 37. Spectre des rayonnements gamma prompts des fissions spontanées du ^{252}Cf modélisé par PoliMi, utilisé également pour la simulation des rayonnements gamma retardés.

3.3 TRAITEMENTS DES DONNEES SIMULEES

Le code d'analyse **DANSE** (*Diagnostic of gAmma-rays and Neutron correlations for Simulation vs. Experiments*) a été développé en Python et en C++ pour traiter les données simulées de façon similaire aux données mesurées, selon les étapes suivantes [Isnel2019] :

1. lecture des données du fichier de résultats MCNPX-PoliMi (« fichiers de collisions ») et extraction des données utiles ;
2. conversion des énergies déposées par les neutrons en énergie équivalente de scintillation (MeVee) ;
3. construction d'un chronogramme , c'est-à-dire la répartition de tous les événements simulés sur un même axe temporel pour les rendre interdépendants les uns avec les autres (trains d'impulsions de la mesure) ;
4. prise en compte du temps d'intégration de la charge ainsi que du temps de paralysie d'une voie après réception d'une impulsion (temps mort électronique) ;
5. application de la résolution temporelle à chaque temps de détection des impulsions (*timestamp*) ;
6. écriture des données transformées dans un TTree de ROOT.

La première étape d'extraction des données utiles est explicitée dans le Chapitre 1, Figure 16. Pour rappel, seront conservés pour chaque interaction :

- le numéro de l'évènement (numéro d'histoire qui a émis la particule à l'origine de l'impulsion) pour l'analyse des coïncidences et le découplage des coïncidences réelles et accidentelles ;
- le numéro de la particule au sein de l'évènement pour identifier la diaphonie entre détecteurs ;
- la nature de la particule pour l'étude des types de coïncidence ($\gamma\gamma$, γnn , etc.) et la conversion des énergies déposées (keV) en énergie équivalente de scintillation (MeVee) ;
- le noyau cible de l'interaction pour la conversion des énergies déposées en énergie équivalente de scintillation (équations (26) et (27)) ;
- le numéro du détecteur où se produit l'interaction pour la reconstruction de la réponse de chaque détecteur et pour l'analyse des multiplicités ;

- l'énergie déposée, à convertir en énergie équivalente de scintillation pour l'application du seuil de coupure bas en énergie ;
- l'intervalle temporel entre l'interaction et l'origine de l'évènement considéré, pour l'analyse des multiplicités mais aussi pour la reconstruction de la réponse des détecteurs (intégration des charges, temps de paralysie des voies, résolution temporelle) ainsi que pour le rejet de la diaphonie.

La deuxième étape considère les colonnes des natures de noyau cible, des énergies déposées, et des natures de particules incidentes. Cette étape de conversion en rendement lumineux est décrite dans le diagramme de la Figure 38 suivante :

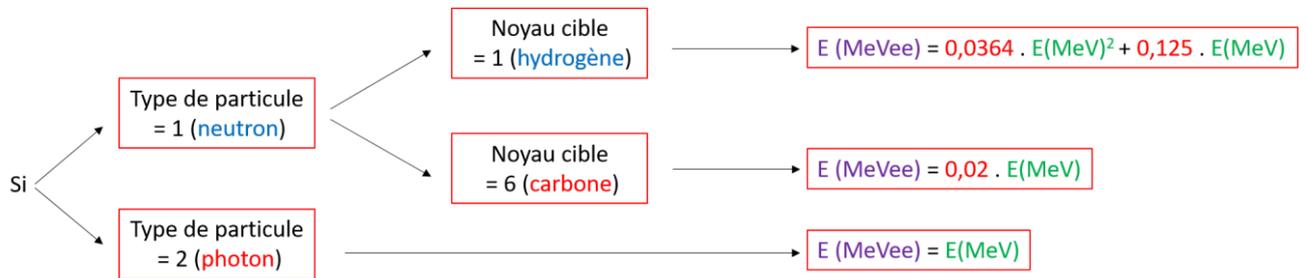


Figure 38. Diagramme de conversion des énergies déposées simulées (en MeV) en énergie équivalente de scintillation (MeVee) dans le code de traitements DANSE.

La troisième étape est liée au fait que les simulations MCNP génèrent chaque évènement (chaque histoire) de manière indépendante. Chaque histoire présente dans les fichiers de collisions n'est donc pas temporellement en lien avec les autres histoires. Pour reproduire un chronogramme d'impulsions tel que ceux mesurés en pratique, en mode liste, les évènements simulés sont répartis de façon aléatoire sur un même axe temporel dont la limite est le temps de mesure total (Figure 39). Ce dernier est multiplié par l'activité de la source, pour le ^{252}Cf ou le ^{60}Co , ou par son taux de réactions (α, n) pour l'AmBe, afin de déterminer le nombre d'évènements N à simuler avec MCNPX-PoliMi et à répartir ensuite sur le chronogramme.

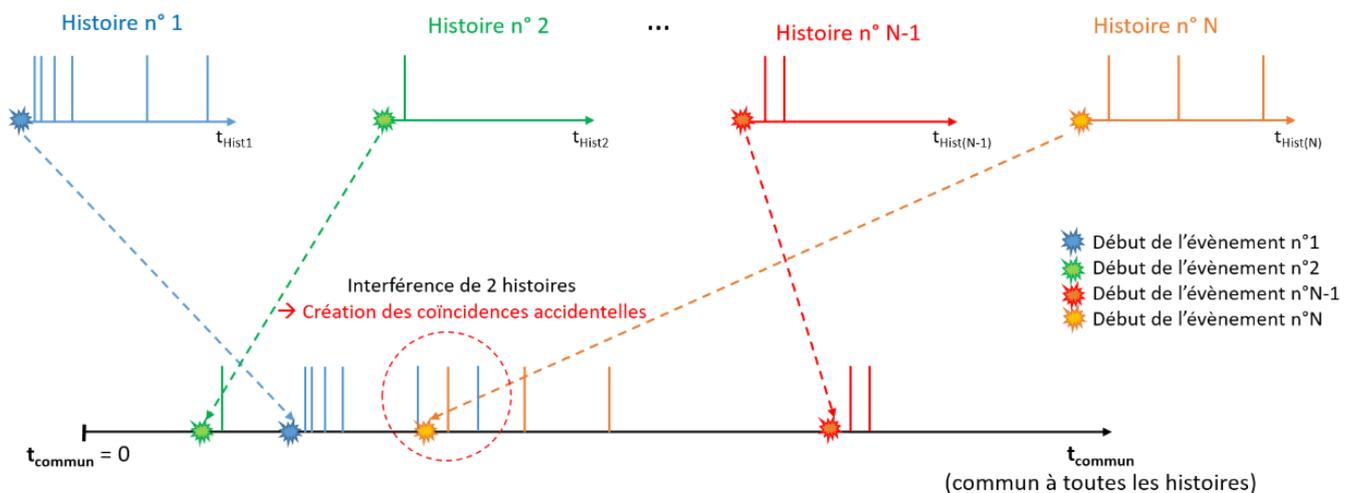


Figure 39. Construction du chronogramme d'interdépendance des évènements répertoriés dans un fichier de collision MCNPX-PoliMi.

La quatrième étape de traitement consiste à reproduire l'intégration des charges dans des intervalles de 60 ns et à introduire un temps mort non-paralysable de 182 ns sur chaque voie de mesure, paramètres d'acquisition fixés via le logiciel CoPASS. Dans les fichiers de collisions, MCNPX-PoliMi répertorie la totalité des interactions des particules dans les volumes d'intérêts que sont les détecteurs. Pour des détecteurs de grandes dimensions, tels que ceux utilisés dans le cadre de cette thèse, des particules peuvent effectuer de nombreuses diffusions dans un même détecteur et dans des intervalles de temps de quelques nanosecondes à quelques dizaines de nanosecondes. La longueur typique des impulsions des scintillateurs PVT de grande dimension utilisés est d'environ 60 ns [Deyglun2014] et la fenêtre d'intégration de la charge a été ajustée sur cette durée. Ainsi, dans le cas de diffusions multiples dans un même détecteur dans un intervalle de temps inférieur à 60 ns, l'ensemble des charges collectées s'additionnent et comptent comme une unique impulsion. Par ailleurs, CoPASS impose un temps mort minimum de 182 ns après le déclenchement d'une voie d'acquisition et il est nécessaire de supprimer les impulsions du fichier de collision MCNPX-PoliMi qui apparaissent moins de 182 ns après une première interaction dans le même détecteur. Ces traitements sont illustrés en Figure 40 :

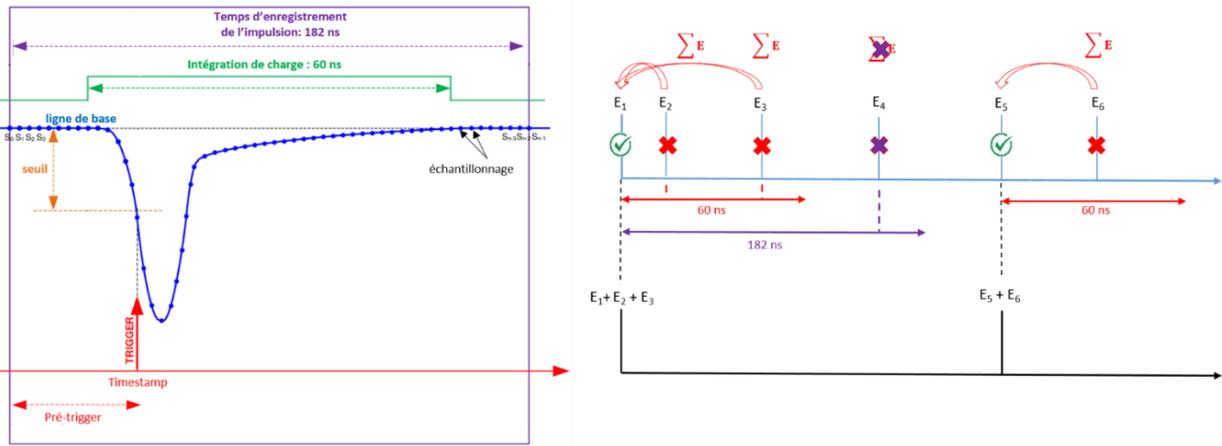


Figure 40. Illustration de la forme d'une impulsion et des paramètres utilisés pour la numérisation avec CoMPASS (à gauche) [CAEN_CoMPASS] et méthode de prise en compte de l'intégration de la charge et de la paralysie des voies avec DANSE (à droite).

Dans l'exemple de la Figure 40, les énergies E_2 et E_3 des 2^{ème} et 3^{ème} impulsions sont sommées avec l'énergie de la 1^{ère} impulsion d'énergie E_1 . La 4^{ème} impulsion d'énergie E_4 est par contre supprimée car située après la fenêtre d'intégration de charge mais dans le temps mort non-paralysable initié par la première impulsion. La prochaine impulsion enregistrée est donc celle d'énergie E_5 , avec laquelle se somme l'énergie E_6 de la 6^{ème} impulsion. Une fois les intégrations de charge et les temps morts d'enregistrement des impulsions considérés, la résolution en énergie du scintillateur PVT est appliquée aux impulsions résiduelles qui sont ensuite soumises à un filtre en énergie, fixé à 100 keVee.

Afin de prendre en compte la résolution temporelle imparfaite du système de mesure, chaque instant de détection (ceux associés à E_1 ou E_5 sur la figure précédente, équivalents au *timestamp* expérimental) des impulsions restantes est soumis à un tirage aléatoire obéissant à une distribution gaussienne avec une largeur totale à mi-hauteur (FWHM) de 4 ns, i.e. la plus pénalisante mesurée en Figure 28. Les anciennes valeurs des instants de détection sont remplacées par ces nouvelles valeurs aléatoires (étape 5) puis les données sont réécrites dans un TTree (étape 6) en vue d'un traitement des données simulées similaire aux données mesurées.

3.4 COMPARAISON EXPERIENCE/CALCUL

Pour valider les résultats expérimentaux, les traitements des données simulées par la méthode du registre à décalage sont comparés aux résultats expérimentaux précédents, dans les Tableau 16, Tableau 17 et Tableau 18 suivants :

Tableau 16. Taux de comptage des multiplicités et des singulets, doublets et triplets simulés vs. expérimentaux pour la source de ^{252}Cf , sans rejet de la diaphonie.

	^{252}Cf (simulation)		^{252}Cf (expérience)	
	R+A	A	R+A	A
M0	11 263,8	14 932,8	13 150,2	16 897,9
M1	2 859,9	27,4	2 864,8	19,3
M2	697,4	4,3	744,5	3,3
M3	127,0	0,8	141,8	0,8
M4	16,0	0,1	18,5	0,1
M5	1,3	0,02	1,6	0
M6	0,06	0	0,1	0
M7	0	0	0	0
S	14 965,6		16 921,5	
D	4 667,6		4 832,7	
T	1 174,8		1 288,2	

Tableau 17. Taux de comptage des multiplicités et des singulets, doublets et triplets simulés vs. expérimentaux pour la source d'AmBe, sans rejet de la diaphonie.

	AmBe (simulation)		AmBe (expérience)	
	R+A	A	R+A	A
M0	51 923,4	55 573,0	53 121,9	57 071,5
M1	3 804,0	340,3	4 013,1	290,8
M2	198,2	19,3	235,4	18,0
M3	7,7	0,8	10,5	1,0
M4	0,2	0,04	0,3	0
M5	0	0	0	0
M6	0	0	0	0
M7	0	0	0	0
S	55 933,5		57 381,3	
D	3 842,5		4 186,9	
T	178,6		228,6	

Tableau 18. Taux de comptage des multiplicités et des singulets, doublets et triplets simulés vs. expérimentaux pour la source de ⁶⁰Co, sans rejet de la diaphonie.

	⁶⁰ Co (simulation)		⁶⁰ Co (expérience)	
	R+A	A	R+A	A
M0	178 794,0	192 573,2	177 021,0	191 600,0
M1	16 492,5	3296,4	17 107,2	3 184,5
M2	837,5	273,3	924,2	289,7
M3	30,3	11,7	34,4	13,6
M4	0,8	0,3	1,0	0,4
M5	0	0	0	0
M6	0	0	0	0
M7	0	0	0	0
S	196 155,0		195 088,0	
D	14 381,6		15 256,7	
T	396,8		469,5	

La simulation présente un bon accord avec l'expérience pour les 3 sources. Les écarts résiduels observés peuvent être dus à la simplification du modèle évoqué précédemment dans le §3.2. Les données simulées sont également comparées à l'expérience du point de vue des histogrammes temporels à deux dimensions en Figure 41 :

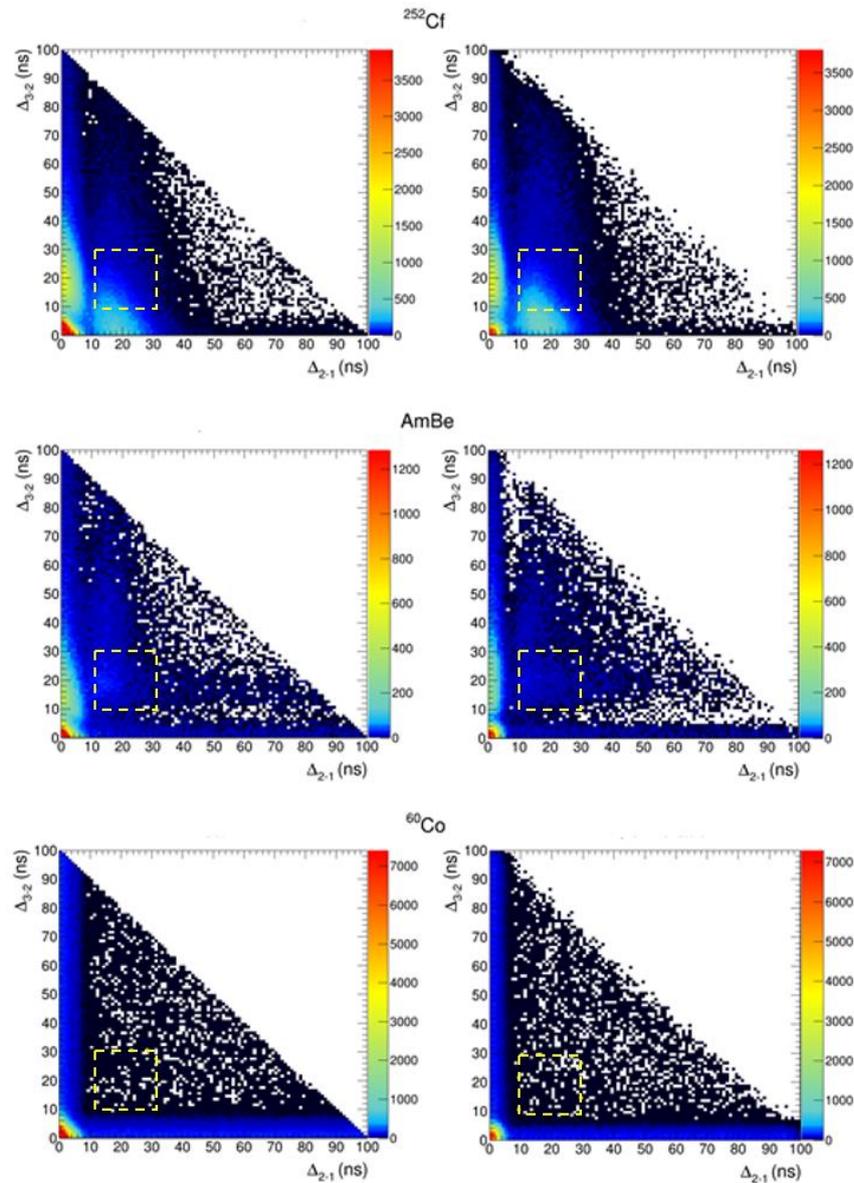


Figure 41. Histogrammes temporels à deux dimensions obtenus par l'expérience (à gauche) et par la simulation (à droite) avec les sources de ^{252}Cf , d'AmBe et de ^{60}Co , sans rejet de la diaphonie. La zone d'intérêt est rappelée par un encadrement pointillé jaune.

Les zones remarquables identifiées expérimentalement sont bien retrouvées en simulation, avec comme seule différence visible une meilleure résolution temporelle pour les calculs en raison de la non prise en compte des flancs non gaussiens observés en Figure 28. Les zones restent toutefois bien distinctes les unes des autres et on retrouve les caractéristiques temporelles attendues. Des simulations complémentaires du transport de la lumière de scintillation dans les détecteurs, selon les positions d'interaction des particules, pourraient probablement permettre d'améliorer encore l'accord expérience-calcul [Carasco2014], mais elles dépassent le cadre de cette thèse.

La validation par l'expérience des simulations permet d'utiliser avec confiance ces dernières pour mieux comprendre les mesures (zones des histogrammes, types de coïncidences $\gamma\gamma\gamma$, $\gamma\gamma n$, etc.), optimiser le traitement des données (par exemple le rejet de la diaphonie, voir § suivant), estimer les performances prévisionnelles (sensibilité, limites de détection, incertitudes de mesure) du dispositif maquette à 16 détecteurs abordé au Chapitre 3 ou celles d'un futur système industriel avec encore plus de détecteurs, de compléter la calibration de ce dernier (simulations à la place de nombreuses expériences avec diverses matrices types de déchets), etc.

3.5 EXPLOITATIONS COMPLÉMENTAIRES DES FICHIERS MCNPX-POLIMI

L'un des avantages majeurs de la simulation par rapport aux mesures expérimentales avec des scintillateurs PVT est la possibilité de différencier les impulsions induites par des neutrons de celles induites par des rayonnements gamma. La Figure 42 et la Figure 43 montrent les différents types de coïncidences ($\gamma\gamma\gamma$, $\gamma\gamma n$, $\gamma n n$ et $n n n$) dans des histogrammes séparés, pour les sources de ^{252}Cf et AmBe, ce qui permet de visualiser leurs contributions respectives dans l'histogramme global.

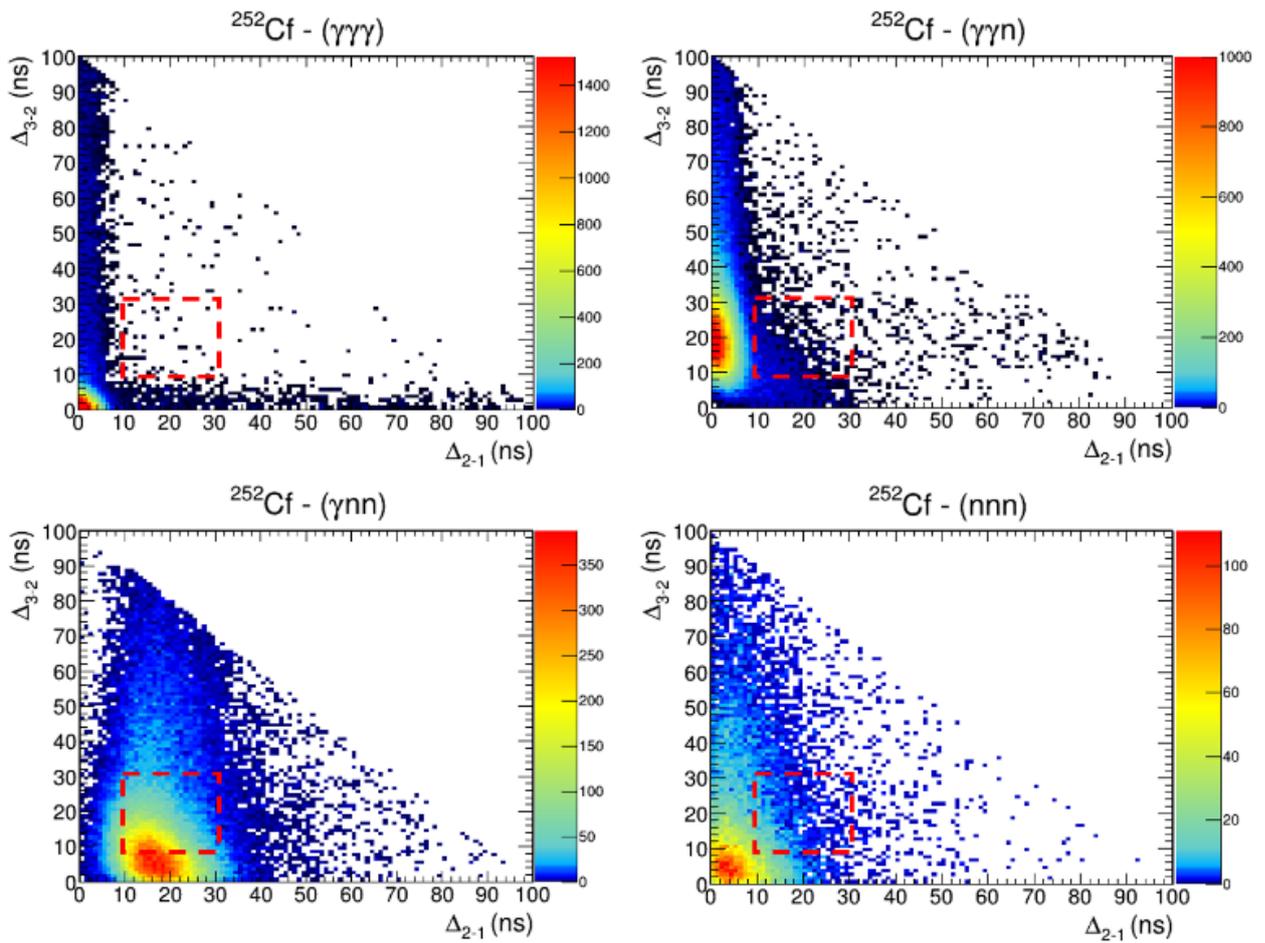


Figure 42. Différents types de coïncidences séparées grâce aux simulations MCNPX-PoliMi pour la source de ^{252}Cf , sans rejet de la diaphonie.

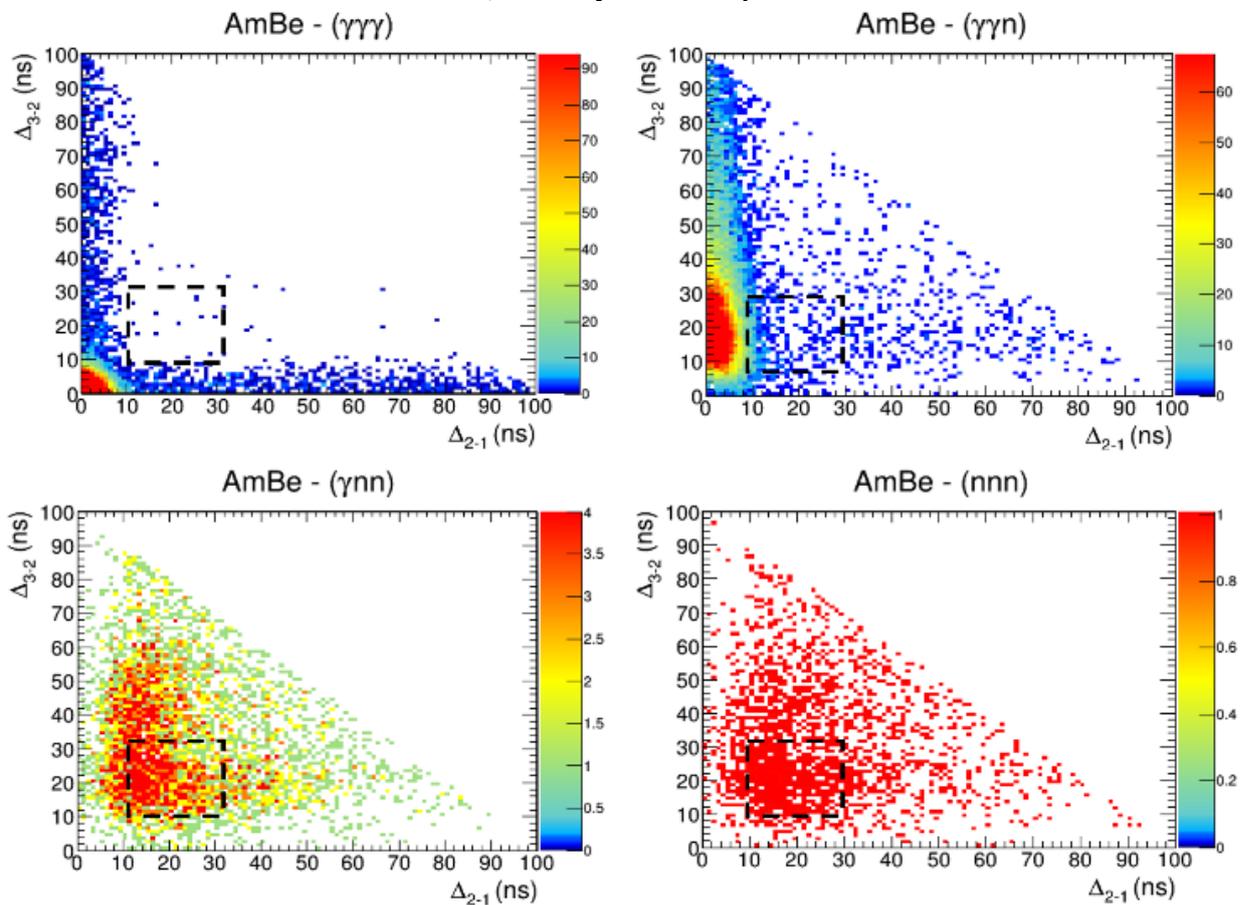


Figure 43. Différents types de coïncidences séparées grâce aux simulations MCNPX-PoliMi pour la source AmBe, sans rejet de la diaphonie.

Ces figures confirment les interprétations réalisées en Figure 33, avec la présence de la région $\gamma\gamma\gamma$ proche de l'origine, la région $\gamma\gamma n$ similaire pour les deux sources et localisée le long de l'axe Δ_{3-2} , et enfin la zone d'intérêt $\gamma n n$ pour le signal utile, très peuplée dans le cas de la source ^{252}Cf et bien moins dans le cas de l'AmBe. Les simulations permettent également de mettre en évidence des coïncidences de type nnn, dont la répartition temporelle est impossible à observer expérimentalement car elles sont masquées par les structures des autres types de coïncidences, notamment $\gamma\gamma\gamma$ vers l'origine. La simulation montre que la plupart des coïncidences nnn se situent à ce niveau, même si elles peuvent s'étendre jusqu'à plusieurs dizaines de nanosecondes du fait la plage étendue de vitesses des neutrons détectables (environ 1 à 4 cm.ns⁻¹). Les coïncidences triples purement neutroniques contribuent donc aussi au signal des fissions spontanées. De façon inattendue, des coïncidences neutroniques triples sont aussi observées en petit nombre dans la zone d'intérêt avec la source AmBe, en raison de diffusions élastiques multiples entre détecteurs. La plupart d'entre elles, tel que discuté au niveau de la Figure 35 et du Tableau 15, pourront être supprimés par le rejet de la diaphonie. Par simulation, il est possible de vérifier le comportement observé dans la projection Rossi-alpha de la Figure 34 (expérience) en isolant les coïncidences triples comprises entre 10 et 30 ns selon Δ_{2-1} et qui comprennent une paire neutronique selon Δ_{3-2} . Cette courbe est proposée dans la Figure 44 suivante :

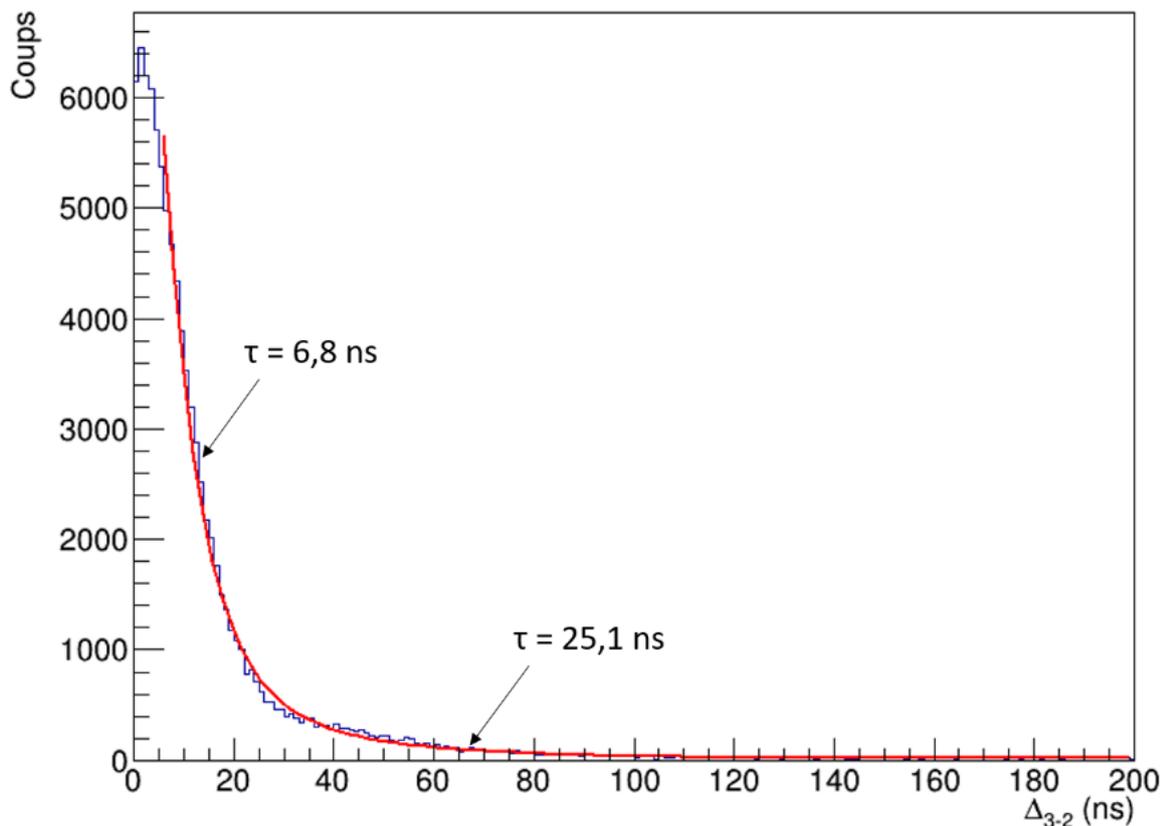


Figure 44. Intervalles temporels Δ_{3-2} pour la simulation de la source de ^{252}Cf en sélectionnant les paires de neutrons formées par les 2^{ème} et 3^{ème} impulsions, lorsque Δ_{2-1} est compris entre 10 ns et 30 ns.

Des constantes de temps similaires à celles qui avaient été observées expérimentalement (8,1 ns et 32,3 ns) sont retrouvées ici, la plus courte liée à la détection directe des neutrons de la source, la seconde aux diffusions neutroniques dans l'environnement (casemate DANAIDES).

Un autre avantage important des simulations est la capacité de discrétiser les coïncidences réelles (particules provenant de la même histoire) des coïncidences accidentelles (particules provenant d'histoires différentes). De plus, il est possible de repérer les coïncidences parasites liées aux diffusions entre détecteurs (diaphonie) lorsqu'un même numéro de particule est retrouvé dans plusieurs détecteurs, pour une histoire donnée. La diaphonie peut donc être totalement éliminée dans les simulations, y compris lorsqu'elle implique des détecteurs qui ne sont pas voisins, tout en conservant intégralement les coïncidences utiles des fissions spontanées. Ce rejet « idéal » de la diaphonie permet, par la simulation, d'évaluer plus précisément les performances de l'algorithme de rejet de diaphonie appliqué expérimentalement en comparant les deux rejets (idéal et expérimental) sur les mêmes jeux de données simulées. Les Figure 45 et Figure 46 suivantes présentent les mêmes histogrammes qu'en début de paragraphe, mais avec l'application de ce rejet idéal de la diaphonie dans des intervalles de temps de 60 ns.

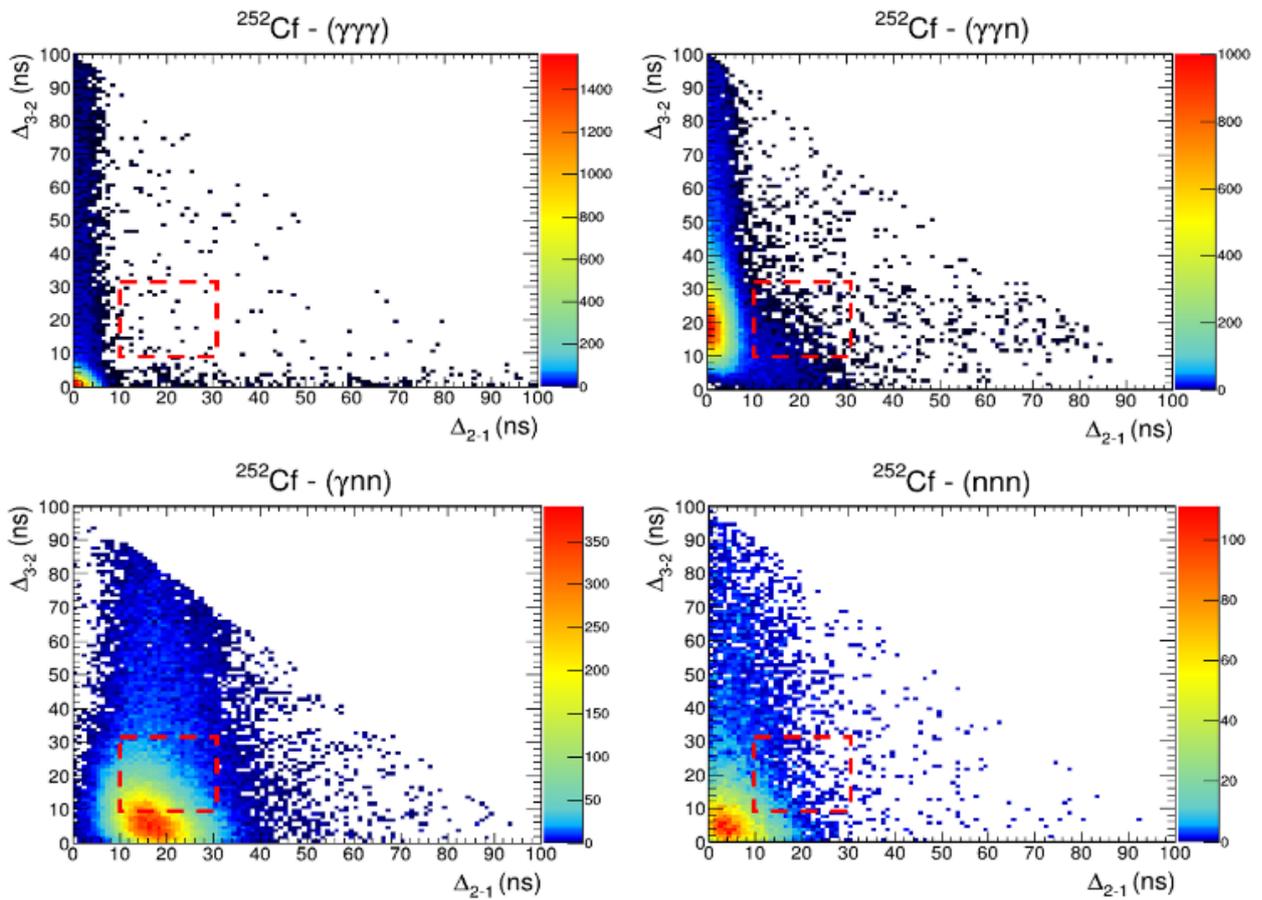


Figure 45. Différents types de coïncidences séparées grâce aux simulations MCNPX-PoliMi pour la source de ^{252}Cf , avec rejet idéal de la diaphonie pendant par paralysie des détecteurs pendant 60 ns.

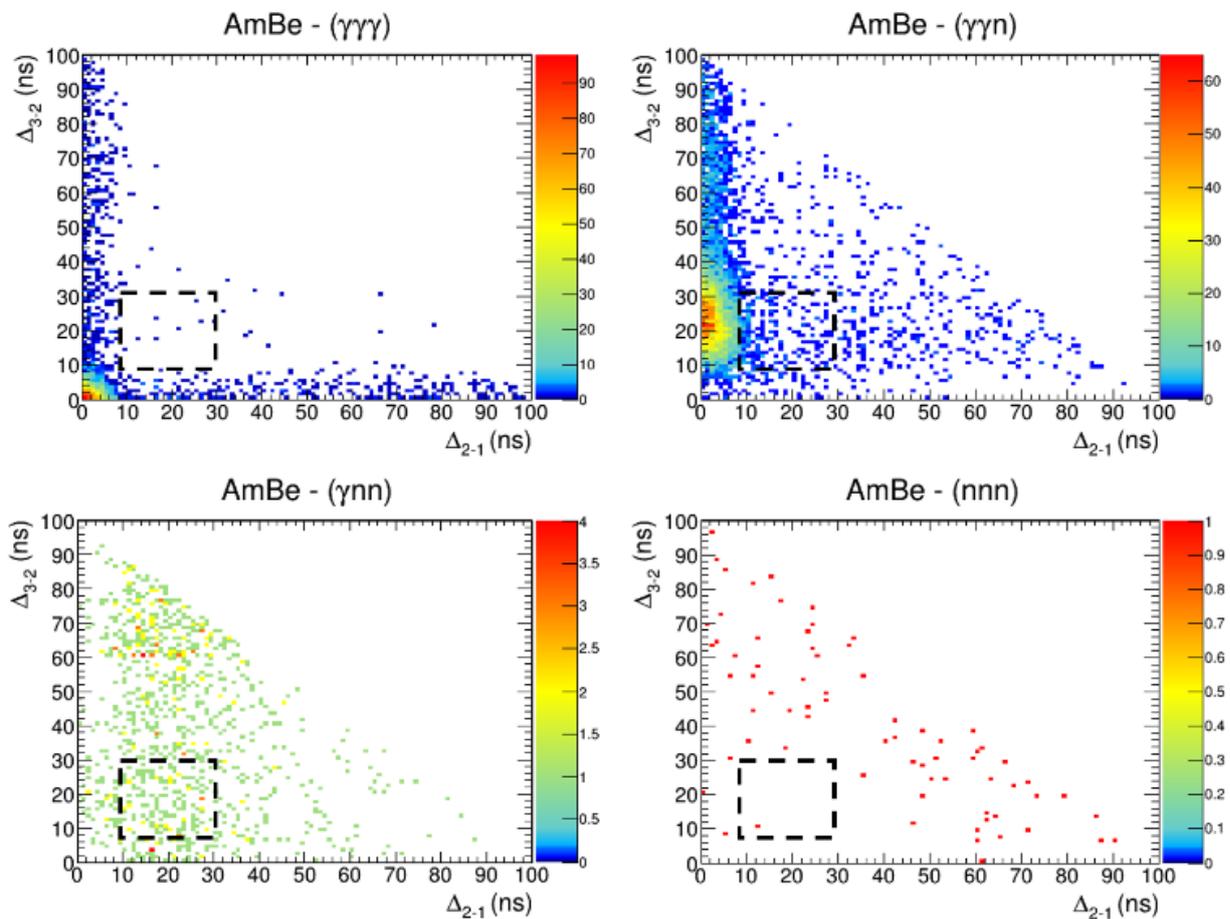


Figure 46. Différents types de coïncidences séparées grâce aux simulations MCNPX-PoliMi pour la source d'AmBe, avec rejet idéal de la diaphonie pendant par paralysie des détecteurs pendant 60 ns.

Le rejet parfait de la diaphonie sur les histogrammes des données simulées avec une source de ^{252}Cf ne montre aucune différence visuelle avec le cas sans rejet de diaphonie (Figure 45 vs. Figure 42). Cependant, la différence est notoire dans le cas de la source AmBe, avec une suppression quasiment complète des coïncidences de type $\gamma n n$ et $n n n$ en Figure 46, par comparaison avec la Figure 43. de façon inattendue, l'histogramme des coïncidences $\gamma \gamma \gamma$ pour l'AmBe montre toujours un léger peuplement le long des deux axes en Figure 46, malgré le rejet idéal de la diaphonie, typique des sources de rayonnements gamma corrélés telles que le ^{60}Co (une paire $\gamma \gamma$ corrélée en coïncidence accidentelle avec une 3^{ème} impulsion γ). L'explication de ce phénomène réside dans le fait que MCNPX-PoliMi ne simule pas seulement le niveau excité du ^{12}C à 4439 keV, mais aussi le niveau excité à 7654 keV. Dans la réalité, l'état excité à 7654 keV, dit « état de Hoyle », se désintègre de manière non-radiative selon la voie suivante [Manfredi2012] [Simony2017] [MCNPX-PoliMi] :



Cependant, MCNPX-PoliMi ne prend pas en compte ce phénomène et génère une raie gamma de 3215 keV (passage de l'état à 7654 keV à l'état à 4439 keV) en cascade avec la raie gamma réellement mesurée de 4439 keV, lorsque le niveau à 7654 keV est peuplé. Une corrélation apparaît donc en simulation, tandis qu'elle n'est pas observée expérimentalement (pas de raie de 3215 keV). Le phénomène est cependant minoritaire et non pénalisant dans le cadre de cette thèse. Il explique aussi pourquoi la région $\gamma \gamma n$ est toujours peuplée, malgré le fait que les paires $\gamma \gamma$ issues des diaphonies ont été rejetées par l'algorithme. Ces coïncidences $\gamma \gamma n$ sont donc dues à la cascade $\gamma \gamma$ puis à une deuxième paire γn avec le neutron de la réaction (α, n).

Il est intéressant de comparer les deux algorithmes de rejet de diaphonie (idéal et expérimental) de manière quantitative avec les mêmes durées de rejet que dans le Tableau 15, comme rapporté dans le Tableau 19 :

Tableau 19. Comptage dans la région d'intérêt du signal utile des coïncidences $\gamma n n$ de fission spontanée pour les simulations des 3 sources, avec et sans rejet de diaphonie et selon la durée de paralysie des détecteurs.

Source radioactive	Sans rejet de la diaphonie	Comptage dans la ROI					
		Rejet de la diaphonie équivalent à la mesure et durée de paralysie des détecteurs voisins			Rejet idéal de la diaphonie et durée de paralysie des détecteurs voisins		
		10 ns	30 ns	60 ns	10 ns	30 ns	60 ns
^{252}Cf	36 098	30 774	9 232	6 194	35 223	32 486	32 126
AmBe	2 956	2 776	387	248	2 739	651	576
^{60}Co	822	729	309	191	744	627	626
RSB	9,6	8,8	13,3	14,1	10,1	25,4	26,7

Tout comme en mesure, la simulation montre que le rejet de diaphonie par paralysie des détecteurs pendant 10 ns n'est pas efficace et n'améliore par le rapport signal sur bruit, qui est même dégradé avec la règle de rejet appliquée expérimentalement car des fissions spontanées utiles sont perdues. L'intervalle temporel de 30 ns constitue le meilleur compromis entre un rapport signal sur bruit élevé grâce au rejet des événements parasites de diaphonie et la préservation du signal utile des fissions spontanées.

La comparaison des colonnes sans rejet et avec rejet idéal de la diaphonie avec paralysie des détecteurs pendant 60 ns montre que seules 11% des coïncidences triples comptées dans le cas du ^{252}Cf impliquent de la diaphonie (36098 contre 32126 coups). La comparaison des colonnes sans rejet et avec le rejet expérimental avec paralysie des détecteurs voisins pendant 60 ns montre cependant que 83% des coïncidences sont rejetées (36098 contre 6194 coups), ce qui montre qu'une grande majorité des événements supprimés par l'algorithme de rejet expérimental sont des événements utiles. Ce sacrifice est cependant essentiel pour s'affranchir de la quasi-totalité des événements parasites (AmBe et ^{60}Co) et maximiser le ratio signal sur bruit. Les comptages résiduels pour les sources parasites sont dus à des coïncidences accidentelles entre plusieurs événements (histoires différentes). Le rejet expérimental de la diaphonie élimine d'ailleurs en partie ces coïncidences accidentelles car c'est une conséquence logique de l'élimination d'une partie du signal utile (576 coups et 626 coups résiduels pour l'AmBe et le ^{60}Co après rejet parfait, tandis que l'algorithme expérimental donne respectivement 248 et 191 coups résiduels, dont 36 des 191 coups du ^{60}Co sont toujours des événements impliquant de la diaphonie).

4. LIMITES DU SYSTEME D'ACQUISITION

Dans l'ensemble de ce chapitre, seules des mesures effectuées avec des sources séparées ont été présentées en raison de limitations en termes de temps morts et d'enregistrement des données à fort taux de comptage. Le ratio signal/bruit a donc été défini à partir des résultats de ces mesures indépendantes, considérées comme additives, mais la comparaison des mesures avec les sources séparées ou simultanément a montré que ce n'était pas le cas. En plus des précédentes mesures avec les sources ^{252}Cf , ^{60}Co et AmBe, une source de ^{137}Cs d'activité 7.85 MBq (au moment de la mesure) a été mesurée individuellement, puis les 4 sources ensemble. La méthode du registre à décalage a été appliquée sur les données brutes, sans application du seuil en énergie ni du rejet de diaphonie. Le dénombrement des multiplicités et des taux de singulets, doublets et triplets sont présentés dans le Tableau 20 :

Tableau 20. Nombre d'évènements détectés aux différents ordres de multiplicités et taux de singulets, doublets et triplets pour les mesures de 5 min en présence des 4 sources ^{252}Cf , AmBe, ^{60}Co et ^{137}Cs , sans rejet de la diaphonie, ni seuillage en énergie, ni soustraction du bruit de fond donné en 2^{ème} colonne.

	BDF	^{252}Cf	AmBe	^{60}Co	^{137}Cs	$^{252}\text{Cf} + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co} + ^{137}\text{Cs}$
	R+A	R+A	R+A	R+A	R+A	R+A
M0	3 159 715	7 035 663	21 890 855	62 756 777	208 619 658	258 477 253
M1	169 951	1 260 824	1 727 671	6 950 599	22 771 104	34 840 294
M2	6 217	312 956	112 941	503 663	1 584 100	3 275 442
M3	270	67 306	6 237	26 406	76 901	258 821
M4	69	10 470	319	1 108	2 763	20 185
M5	27	1 147	26	42	90	1 489
M6	10	101	7	5	1	94
M7	2	2	2	0	0	2
S	11 121	28 962	79 127	234 129	776 849	989 579
D	574	6 952	5 633	20 723	26 097	40 683
T	26	1 951	401	1 399	1 381	4 194

Pour quantifier cette non-additivité, on peut comparer la somme des mesures individuelles et la mesure combinée, avec correction de bruit de fond :

$$\sum S_{\text{sources séparées}} = 1\,074\,583 \text{ s}^{-1} \text{ et } S_{\text{sources ensemble}} = 978\,458 \text{ s}^{-1} \quad (33)$$

$$\sum D_{\text{sources séparées}} = 57\,109 \text{ s}^{-1} \text{ et } D_{\text{sources ensemble}} = 40\,109 \text{ s}^{-1} \quad (34)$$

$$\sum T_{\text{sources séparées}} = 5\,028 \text{ s}^{-1} \text{ et } T_{\text{sources ensemble}} = 4\,168 \text{ s}^{-1} \quad (35)$$

On constate un écart de 10 % sur les taux de singulets, 42% sur les doublets et 21% sur les triplets. Afin de comprendre ces écarts anormalement élevés compte tenu du temps mort maximal abordé plus bas pour ces différentes mesures (moins de 3 % pour celle avec les 4 sources ensemble), des histogrammes représentant l'évolution tout au long de l'acquisition des taux d'impulsions enregistrées sont donnés dans les Figure 47 (sources séparées) et Figure 48 (sources ensemble), indiquant aussi les taux d'impulsions entrants :

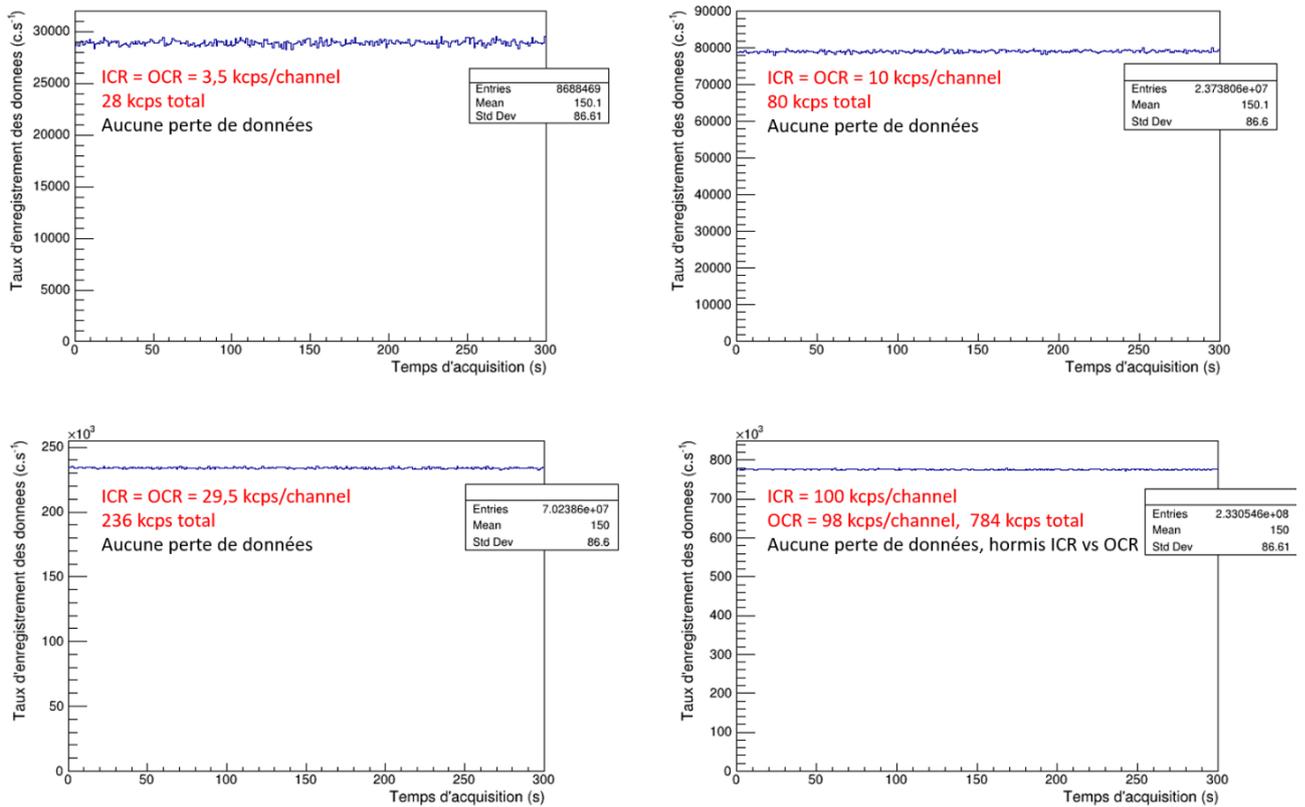


Figure 47. Taux d'enregistrement des données pour les 4 acquisitions de 5 min avec les sources séparées.

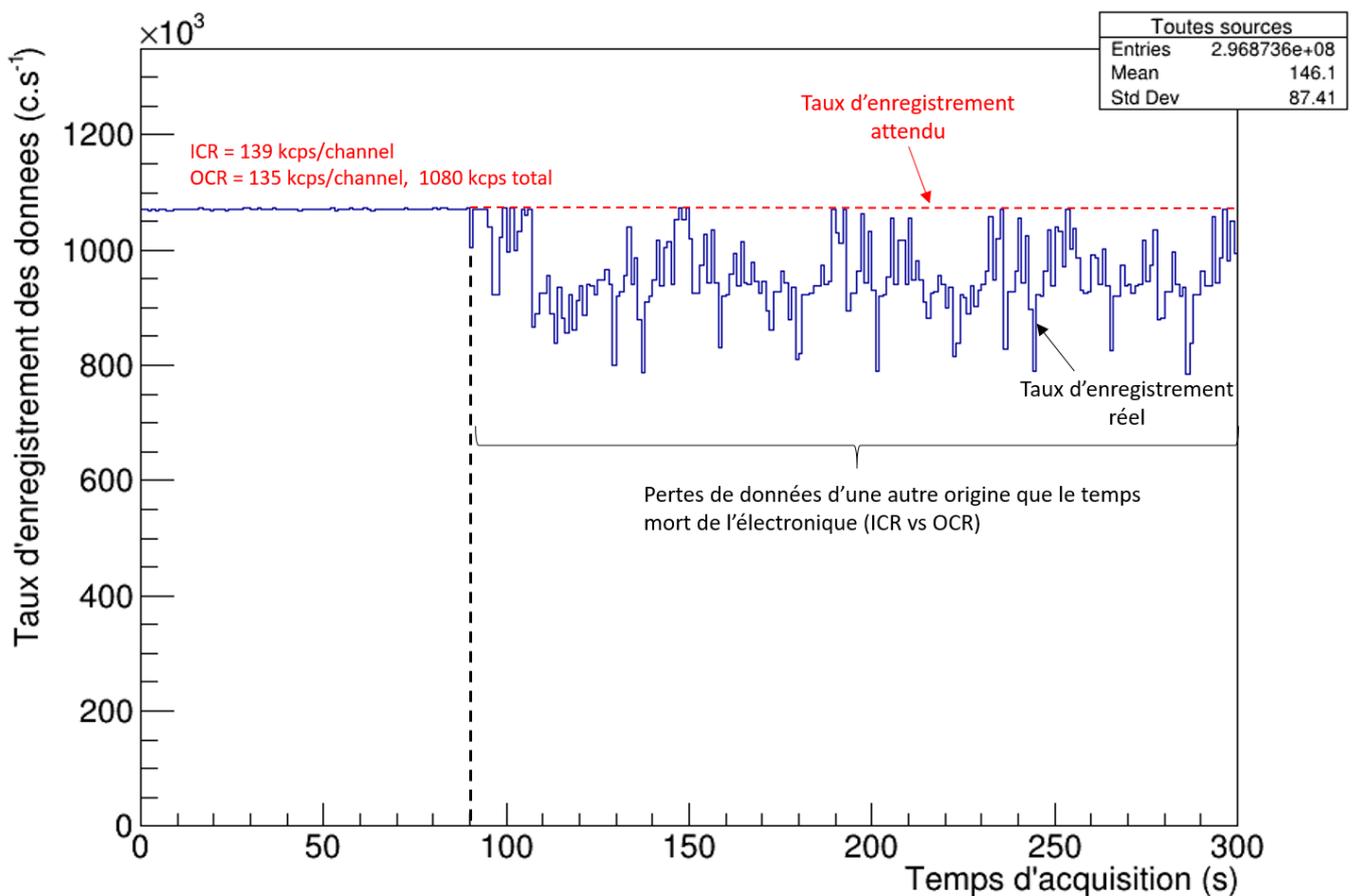


Figure 48. Taux d'enregistrement des données sur les 5 min d'acquisition avec les 4 sources ensemble.

La Figure 47 montre que les enregistrements de données sont réguliers pour les sources mesurées séparément, tout au long de chaque acquisition de 5 min. Le logiciel CoPASS met à disposition les ICR (*Input Counting Rate*, le taux d'impulsions analogiques entrant dans l'électronique, en provenance des détecteurs) et les OCR (*Output Counting Rate*, taux d'impulsions numérisées et réellement enregistrées) qui permettent d'estimer le temps mort propre à l'électronique [CAEN_CoPASS]. Les mesures séparées ne présentent pas de temps mort significatif, hormis celle du ^{137}Cs qui montre un OCR inférieur de 2% à l'ICR pour chacune des voies de mesure. En revanche, la Figure 48 montre que dans le cas des sources ensemble, le taux d'enregistrement OCR est constant dans le premier tiers de la mesure (90 s avec un temps mort de 2.9%) mais présente des fluctuations anormales ensuite, le système d'acquisition ne semblant plus en mesure de supporter l'ICR de 1112 kc.s^{-1} et de maintenir l'OCR initial de 1080 kc.s^{-1} . La perte initiale constante de données (2.9%) est liée au temps mort de la numérisation des impulsions et peut être corrigée, mais les fluctuations qui suivent engendrent une perte moyenne de l'ordre de 9 % (avec un OCR de 135 kc.s^{-1} pendant 300 s, on attendrait $3,24 \cdot 10^6$ impulsions mais seulement $2,97 \cdot 10^6$ sont enregistrées), difficilement corrigé du fait de son caractère aléatoire.

Pour compléter cette analyse, le Tableau 21 donne les résultats pour les 90 premières secondes d'acquisition, avant le décrochement de l'enregistrement des données et les fluctuations observées :

Tableau 21. Analyse similaire à celle du Tableau 20 mais limitée aux 90 premières secondes d'acquisition.

	BDF	^{252}Cf	AmBe	^{60}Co	^{137}Cs	$^{252}\text{Cf} + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co} + ^{137}\text{Cs}$
	R+A	R+A	R+A	R+A	R+A	R+A
M0	947 515	2 108 556	6 555 788	18 816 757	64 730 810	82 890 308
M1	51 241	378 428	517 531	2 088 965	4 760 711	12 133 154
M2	1 914	93 769	33 760	151 547	370 439	1 242 145
M3	79	20 046	1 850	7 937	19 084	107 051
M4	17	3 132	97	338	753	9 162
M5	10	343	6	12	14	761
M6	3	32	2	1	0	50
M7	1	1	0	0	0	2
S	11 120	28 937	78 990	234 063	776 463	1 070 918
D	577	6 947	5 613	20 710	26 056	48 836
T	27	1 943	397	1 393	1 393	5 662

Seules les mesures avec le ^{137}Cs et avec l'ensemble des sources sont sujettes à des temps morts significatifs (respectivement 2% et 2,88%, calculés à partir des ICR et OCR). Pour vérifier l'additivité des mesures pour ces 90 premières secondes, les taux de comptages totaux (c.-à-d. les taux de singulets) sont corrigés du temps mort et du bruit de fond :

$$\sum S_{\text{sources séparées}} = 28937 + 78990 + 234063 + \left(\frac{100}{100 - 2} \right) * (776463) - 4 * 11120 = \mathbf{1\ 089\ 819\ s^{-1}}$$

$$S_{\text{Sources ensemble}} = \left(\frac{100}{100 - 2,88} \right) * 1070917 - 11120 = \mathbf{1\ 091\ 554\ s^{-1}}$$

Les taux de comptage totaux corrigés sont identiques, aux fluctuations Poissoniennes près, ce qui montrent que les premières 90 secondes seraient exploitables, contrairement à la deuxième partie de la mesure sujette à des pertes de comptage importantes et non prévisibles.

Une étude complémentaire a été réalisée pour comprendre l'origine de ces fluctuations à taux de comptage total avoisinant 1 MHz (ICR_{tot} = 1112 kHz dans l'exemple de la Figure 48). Cette étude, proposée en Annexe 2, a été communiquée au constructeur CAEN qui a identifié le logiciel CoPASS comme facteur limitant dans l'enregistrement des données, avec une saturation progressive de la mémoire tampon. Dans l'exemple de la Figure 48, le remplissage progressif des tampons s'effectue dans les 90 premières secondes, de manière plus rapide que le traitement et l'envoi des données sur disque. Une partie des données suivantes est ensuite perdue lorsque les mémoires tampons doivent se vider partiellement avant de pouvoir accepter de nouvelles données.

Cette limitation importante est l'une des raisons principales ayant conduit à la volonté de se tourner vers une autre électronique d'acquisition, capable de supporter de tels taux de comptage sans pertes de données. Le prochain chapitre présente les essais expérimentaux réalisés avec l'électronique FASTER développée au CNRS/LPC, le Laboratoire de Physique Corpusculaire de CAEN [FASTER].

CONCLUSION DU CHAPITRE 2

Ce chapitre a permis de démontrer expérimentalement et par simulation numérique la possibilité d'utiliser des scintillateurs au plastique PVT basiques, à la fois sensibles aux neutrons et aux rayonnements gamma mais sans capacité de discrimination entre ces particules, pour séparer un signal utile de fission spontanée de différents signaux parasites dus à des réactions (α, n), cascades gamma ou coïncidences accidentelles.

Deux approches différentes ont été testées. L'application de la méthode historique du registre à décalage et du dénombrement des triplets permet d'exclure de manière probabiliste les événements accidentels qui peuplent les ordres élevés des multiplicités, pour isoler les événements réels des fissions. A partir de mesures de sources de ^{252}Cf (signal utile des fissions spontanées) et AmBe (réactions (α, n) parasites) présentant un ratio alpha pénalisant de 6.4 (ratio des émissions neutroniques AmBe/ ^{252}Cf , respectivement $3,6 \cdot 10^4$ et $2,3 \cdot 10^5$ n.s $^{-1}$), un ratio signal/bruit mesuré de 2.3 est obtenu malgré la présence d'une source parasite additionnelle de rayonnements gamma corrélés de ^{60}Co d'environ 900 kBq. Ce ratio correspond au nombre de triplets dus au ^{252}Cf sur la somme de ceux des sources parasites AmBe et ^{60}Co , les 3 mesures ayant été effectuées séparément.

Une nouvelle approche consiste à exploiter les temps de détection des impulsions au sein des coïncidences d'ordres 3 et supérieurs dans des histogrammes à deux dimensions (écart de temps Δ_{12} entre la 1^{ère} et la 2^{ème} impulsion vs. Δ_{23} entre la 2^{ème} et la 3^{ème}), ce qui permet d'améliorer le ratio signal/bruit jusqu'à 5.1 sans rejet de diaphonie et jusqu'à 7.1 avec rejet. Cette approche nouvelle n'est pas basée sur une discrimination des types de particules (neutron ou gamma) comme le ferait la PSD, mais sur la discrimination des types de coïncidences ($\gamma\gamma\gamma$, $\gamma\gamma n$, $\gamma n n$, $n n n$). Ainsi, la méthode permet de bénéficier de la grande multiplicité des neutrons et rayonnements gamma prompts des fissions spontanées, les seconds n'étant plus considérés comme un signal parasite lorsqu'ils sont détectés avec les neutrons d'une même fission. Au contraire, ils contribuent à améliorer la statistique du signal utile tout en générant un repère temporel (« *trigger* ») pour repérer les coïncidences utiles, de type $\gamma n n$, du fait de la différence importante de temps de vol entre neutrons et rayonnements gamma.

Des simulations avec le code MCNPX-PoliMi ont, après validation du processus de calcul par l'expérience, permis de bénéficier d'informations non disponibles par la mesure, telles que la connaissance de la source des impulsions (fission spontanée, réaction (α, n), désexcitation gamma) et la nature des particules (n ou γ), ainsi que l'identification précise des événements de diaphonie ou des coïncidences accidentelles. L'outil numérique a permis de valider les interprétations réalisées lors des mesures quant aux types de coïncidences ($\gamma\gamma\gamma$, γn , $\gamma n n$) et leurs régions temporelles sur les histogrammes 2D. De plus, l'implémentation d'un rejet parfait de la diaphonie et sa comparaison avec le rejet utilisé expérimentalement a permis d'optimiser ce dernier. Avec une paralysie pendant 60 ns des détecteurs voisins de celui d'une primo-détection, la quasi intégralité des coïncidences parasites de diaphonie sont éliminées, mais une perte de signal utile d'un facteur 4 à 5 est observée. Une optimisation de la durée de rejet montre que le meilleur compromis entre la conservation du signal utile et l'élimination de la diaphonie se situe vers 30 ns.

Le logiciel CoMPASS utilisé pour piloter l'électronique d'acquisition DT5730 de CAEN S.p.A. ayant montré des limitations importantes à fort taux de comptage, à savoir des fluctuations significatives et non reproductives du taux d'impulsions traitées et transmises au PC d'acquisition, une nouvelle électronique FASTER du CNRS/LPC sera introduite pour les prochaines expérimentations présentées dans ce manuscrit. Celles-ci sont abordées au Chapitre 3 suivant et concernent la démonstration de faisabilité de la méthode avec des colis maquette de 118 L remplis de matrices inactives (bois, métal) simulant des déchets technologiques, dans lesquelles seront placées les même sources (^{252}Cf , AmBe, ^{60}Co , ^{137}Cs) et des échantillons de plutonium. Un dispositif à 16 détecteurs au plastique PVT de $10 \times 10 \times 100$ cm 3 sera mis au point avec l'électronique FASTER, ce qui permettra d'améliorer la statistique de comptage et de compenser les pertes de comptages dues à l'atténuation des rayonnements dans les matrices, notamment aux ordres élevés de multiplicité, ou dans la ceinture de plomb qui sera ajoutée pour protéger les détecteurs des rayonnements gamma intenses des échantillons de Pu. De plus, ce plus grand nombre de détecteurs (16 contre 8 précédemment) permettra de limiter la perte de signal utile (coïncidences de fission) lors du rejet de la diaphonie par paralysie des détecteurs voisins de celui qui a déclenché une coïncidence.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE 2

- [Bottau2019] V. Bottau, R. De Stefano, C. Carasco, B. Perot, C. Eleon, « Procédé de détection de radiations et système associé mettant en œuvre une discrimination des coïncidences neutrons-gamma », FR19650, 2019.
- [Bottau2020] V. Bottau, L. Tondut, P.-G. Allinei, B. Pérot, C. Eleon, C. Carasco, R. De Stefano, G. Faussier, “High Resolution Gamma Spectrometry of Plutonium Bearing Waste Drum With High-Energy Reaction-Induced Gamma Rays” IEEE Transactions on Nuclear Science, Vol. 67, No. 4 (2020) 575-584.
- [Bottau2021] V. Bottau, C. Carasco, B. Perot, C. Eleon, R. De Stefano, L. Isnel, I. Tsekhanovich, « Sorting fission from parasitic coincidences of neutrons and gamma rays in plastic scintillators », submitted to NIM A.
- [CAEN_CoMPASS] User Manual CoMPASS, Multiparametric DAQ Software or Physics Applications, Rev 8, march 13th 2019, <https://www.caen.it/products/compass/>.
- [CAEN_DT5730] DT5730 / DT5730S, 8 channel 14 bit 500 MS/s Digitizer, <https://www.caen.it/products/dt5730/>.
- [Carasco2014] C. Carasco, B. Pérot, S. Normand, G. Sannié, “POLITRANI, a New Toolkit to Simulate Organic Scintillator Pulses” , IEEE Transaction on Nuclear Science, Vol. 61, No.4, August 2014.
- [DeStefano2018] Communication privée.
- [Deyglun2014] C. Deyglun, “Détection de matière nucléaire par interrogation neutronique avec la technique de la particule associée”, thèse de doctorat, 2014.
- [EJ200] Eljen Technology, General Purpose EJ-200 EJ-204 EJ-208 EJ-212, accédé le 20/07/21 <https://eljentechnology.com/products/plastic-scintillators/ej-200-ej-204-ej-208-ej-212>.
- [Ensslin1991_1] N. Ensslin, “Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Chapter 1: The origin of Gamma rays”, NUREG/CR-5550,LA-UR-90-732, March 1991.
- [Ensslin1991_11] N. Ensslin, “Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Chapter 11: The origin of Neutron Radiation”, NUREG/CR-5550,LA-UR-90-732, March 1991.
- [FASTER] “Fast Acquisition System for nuclear Research”, LPC CAEN, <http://faster.in2p3.fr>.
- [Firestone1996] R. B. Firestone, V. S. Shirley, “Table of Isotopes”, 1 Volume Set. 1996.
- [Gozani1981] T. Gozani, “Active Nondestructive Assay of Nuclear Materials”, NUREG/CR-0602, SAI-MLM-2585, January 1981.
- [Isnel2019] L. Isnel, “Monte Carlo simulation analysis of neutron and gamma rays detection with plastic scintillators”, rapport de stage de License 3, CEA Cadarache, Laboratoire de Mesures Nucléaires, 2019.
- [Knoll1989] G. F. Knoll, “Radiation Detection and Measurement”, 2nd edition, 1989.
- [Lane2015] T. K. Lane, E. J. Parma, “Delayed Fission Gamma-Ray Characteristics of ²³²Th, ²³³U, ²³⁵U, ²³⁸U and ²³⁹Pu”, Sandia National Laboratory Report, SAND2015-7024, August 2015.
- [Laraweb] Nucléide – Lara, Library for gamma and alpha emissions, <http://www.nucleide.org/Laraweb/index.php>, consulté le 08/07/2021.
- [Liu2007] Z. Liu, J. Chen, P. Zhu, Y. Li, G. Zhang, “The 4.438 MeV gamma to neutron ratio for the Am-Be neutron source”, Applied Radiation and Isotopes, 65, April 2007.
- [Manfredi2012] J. Manfredi, R. J. Charity, K. Mercurio, R. Shane, L. G. Sobotka, A. H. Wuosmaa, A. Banu, L. Trache, R. E. Tribble, “ α -decay of excited states in ¹²C”, Nuclear Structure 2012, Argonne National Laboratory, August 13-17 2012.
- [MCNPX-PoliMi] E. Padovani, S. A. Pozzi, S. D. Clarke, E. C. Miller, « MCNPX-PoliMi Users Manual ».
- [Pozzi2004] S. A. Pozzi, J. A. Mullens, J. T. Mihalczo, “Analysis of neutron and photon detection position for the calibration of plastic (BC-420) and liquid (BC-501) scintillators”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 524, 2004, 92-101.

[ROOT_CERN] ROOT, Data Analysis Framework, <https://root.cern>, accédé le 19/07/2021.

[ROOT_TTree] ROOT Reference Guide, TTree Class Reference, TTree Library, accédé le 19/07/2021 <https://root.cern.ch/doc/master/classTTree.html>.

[Siciliano2008] E. R. Siciliano, J. H. Ely, R. T. Kouzes, J. E. Swepe, D. M. Strachan, S. T. Yokuda, "Energy calibration of gamma spectra in plastic scintillators using Compton kinematics", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 594, 2008, 232-243.

[Simony2016] B. Simony, C. Deyglun, B. Pérot, C. Carasco, N. Saurel, S. Colas, J. Collot, "Cross-Talk Characterization in Passive Neutron Coincidence Counting of Radioactive Waste Drums With Plastic Scintillators", IEEE Transactions on Nuclear Science, vol. 63, no. 3, June 2016.

[Simony2017_a] B. Simony, B. Perot, C. Carasco, F. Jallu, N. Saurel, S. Colas, P. Gironès, J. Collot, "Passive Neutron Coincidence Counting With Plastic Scintillators for the Characterization of Radioactive Waste Drums" , IEEE Transactions on Nuclear Science, vol. 64, no. 10, October 2017.

[Waldo1981] R. W. Waldo, R. A. Karam, R. A. Meyer, "Delayed neutron yields: Time dependant measurements and a predictive model", Physical Review C 23, 113 – 1 March 1981.

Chapitre 3 – Application de la discrimination temporelle des coïncidences pour la caractérisation du plutonium dans les fûts de déchets radioactifs

1. INTRODUCTION

Ce chapitre vise à implémenter un dispositif de mesure plus proche d'une application industrielle, avec davantage de détecteurs et une électronique adaptée. Nous présentons dans ce chapitre une maquette à l'échelle 1 d'un futur poste industriel et nous étudions ses performances, expérimentalement et par simulation numérique. A cette fin, le modèle numérique, basé sur des simulations MCNPX-PoliMi, est validé grâce à des comparaisons expérience-calcul avec des sources de ^{252}Cf , AmBe et ^{60}Co dans un fût étalon rempli avec une matrice métallique ou organique. Les mesures et simulations sont ensuite utilisées pour estimer les effets de la matrice des déchets et de la localisation du contaminant dans le colis, les limites de détection, l'influence du ratio alpha (rapport des taux d'émission de neutrons de réactions (α,n) et de fissions spontanées), du taux de comptage, du rejet de la diaphonie, du seuil de coupure électronique, etc.

2. NOUVEAU DISPOSITIF EXPERIMENTAL POUR FUTS DE DECHETS RADIOACTIFS

2.1 EVOLUTION DU SYSTEME DE DETECTION

Dans l'optique de valider la méthode dans des conditions réalistes, le dispositif de mesure présenté dans le chapitre précédent a été amélioré avec 8 détecteurs supplémentaires pour optimiser la couverture géométrique et donc l'efficacité de détection. Ce nouveau dispositif qui peut recevoir des fûts de déchets jusqu'à un volume de 220 L est présenté dans la Figure 49 suivante.

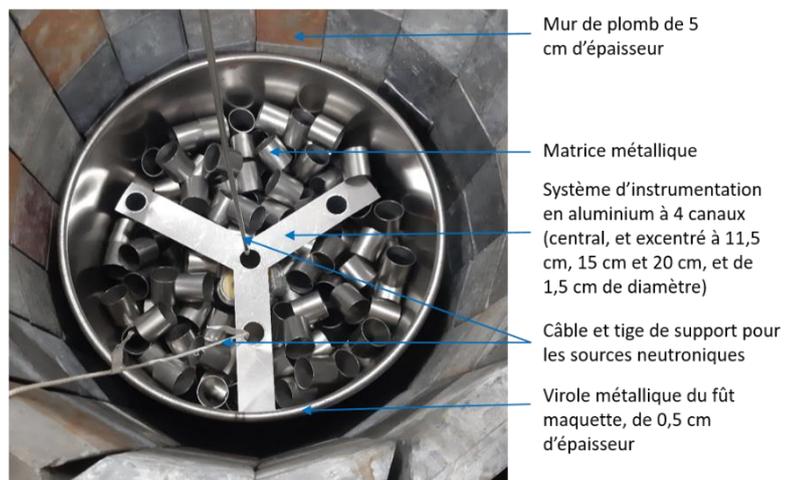


Figure 49. Dispositif de mesure maquette pour fûts de déchets radioactifs de 100 à 220 L.

Une ceinture de plomb d'environ une tonne, constituée avec 10 couronnes superposées contenant chacune 18 briques de plomb (alliage avec quelques pourcents d'antimoine, densité 10,5) chevronnées d'épaisseur 5 cm a notamment été ajoutée afin de limiter l'influence des rayonnements gamma parasites qui accompagnent les désintégrations α et β des isotopes du plutonium et de l'américium. Elle permet également de réduire les taux de comptage qui se sont montrés pénalisants avec le système provisoire de démonstration de la méthode, au chapitre précédent. Un fût maquette de 118 litres (43 cm de diamètre et 72 cm de hauteur) est placé au centre de ce dispositif en Figure 49. Un système d'instrumentation en aluminium, de 60 cm de hauteur et comportant 4 canaux, permet le positionnement des sources étalon ou échantillons de plutonium en différentes positions radiales et axiales dans le fût. Les déchets technologiques sont représentés avec deux types de matériaux représentatifs des grandes familles de déchets technologiques réels, à savoir des matériaux métalliques (exemple de la Figure 49) et organiques. Les caractéristiques de ces deux matrices de déchets sont présentées dans le Tableau 22.

Tableau 22. Caractéristiques des deux matrices de déchets utilisées pour les mesures.

	Matrice métallique	Matrice Organique
		
Nature	Acier Austénitique 18-8 Cylindres creux	Bois (cellulose C ₆ H ₁₀ O ₅), CH ₂ Cylindres pleins
Composition (en fraction massique)	⁵⁶ Fe, 70% ⁵⁸ Ni, 18% ⁵² Cr, 8% ²⁸ Si, 2% ⁵⁵ Mn, 2%	¹² C, 65,1% ¹⁶ O, 24,6% ¹ H, 10,2%
Densité apparente	0,5	0,3
Hauteur de remplissage dans le fût	A hauteur de l'instrumentation (60 cm)	

La Figure 50 ci-dessous présente de manière plus précise la disposition des différentes sources mesurées dans l'ensemble de ce chapitre :

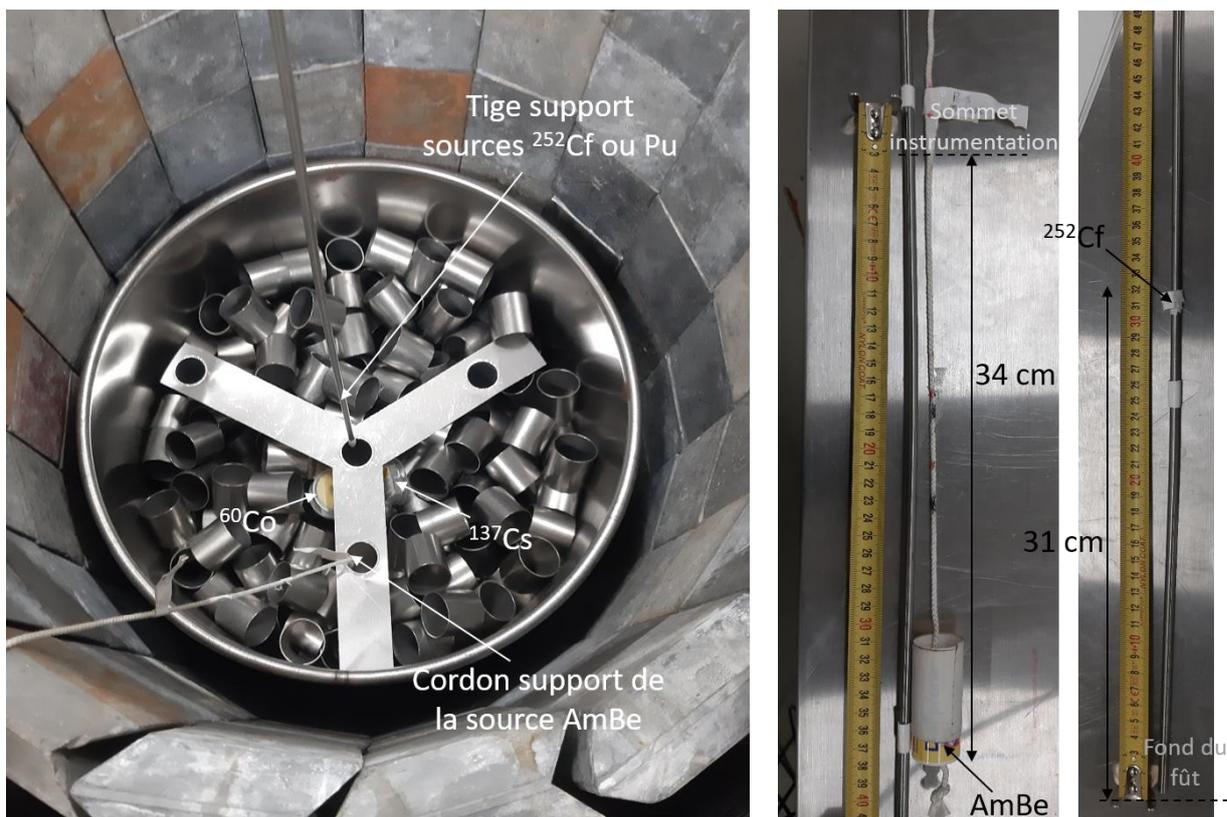


Figure 50. Disposition des sources de ²⁵²Cf, AmBe, ¹³⁷Cs et ⁶⁰Co dans le système d'instrumentation.

Une tige métallique ou une ficelle sont utilisées pour introduire dans les canaux les plaquettes de plutonium ou les sources de ²⁵²Cf et d'AmBe, qui seront présentés dans le paragraphe suivant. Pour toutes les mesures présentées dans ce chapitre, la source AmBe est positionnée dans le premier tube excentré de l'instrumentation ($r = 11,5$ cm) à une profondeur de 34 cm par rapport au sommet de l'instrumentation. Les sources de ²⁵²Cf sont placées dans le tube central à une hauteur de 31 cm par rapport au fond du fût (29 cm de profondeur par rapport au sommet de l'instrumentation) Les plaquettes de plutonium sont fixées les unes au-dessus les autres verticalement dans le tube central de l'instrumentation, de façon à ne pas s'auto-atténuer mutuellement, et cet ensemble de 4 plaquettes d'environ 22 cm de hauteur au total est centré par rapport à la hauteur totale de la matrice (19 cm au-dessus du fond du fût pour la partie basse et 19 cm en dessous du sommet de la matrice, pour la partie haute de l'assemblage des plaquettes). En raison de leur conditionnement trop volumineux, les sources de rayonnement gamma ne

peuvent pas être introduites dans les canaux, elles sont donc posées au-dessus de la matrice métallique ou organique. La campagne expérimentale a été réalisée dans la casemate BIHAN (les premiers essais du chapitre précédent avaient été réalisés dans la casemate DANAIDES).

2.2 SOURCES RADIOACTIVES

Plusieurs sources de fissions spontanées de ^{252}Cf , d'activités différentes, sont utilisées, ainsi que la source AmBe déjà évoquée au chapitre précédent pour les réactions (α, n), ce qui permet de représenter une large gamme de ratios alpha susceptibles d'être rencontrés sur le terrain, voir Tableau 23. Des plaquettes de plutonium sont aussi mesurées pour valider la méthode dans des conditions les plus réalistes possibles. Les isotopes pairs du plutonium sont en effet plus pénalisants que le ^{252}Cf pour la mesure neutronique car ils disposent d'une moins grande multiplicité moyenne de neutrons émis par fission spontanée (environ 2,2 contre 3,7 [Ensslin1991_11]) et l'importante radioactivité alpha et bêta des isotopes du plutonium et de l'américium est à l'origine d'une émission intense de raies gamma de désexcitation [Ensslin_1991_1] [Bottau2020] qui peuvent parasiter la mesure des coïncidences de fissions spontanées en créant un bruit de fond accidentel de niveau très élevé. Les caractéristiques complètes des plaquettes de plutonium à disposition au laboratoire et utilisées pour les études sont présentées dans le Tableau 24.

Tableau 23. Caractéristiques des sources de ^{252}Cf et de la source d'AmBe utilisées pour les études.

	Activité initiale, en Bq	Activité réactualisée, en Bq (24/02/21)	Emission neutronique (fissions spontanées, ou réactions (α, n)) en $n.s^{-1}$	Ratio alpha avec la source AmBe	Masse équivalente de plutonium 240 en g
^{252}Cf (n°1)	$4,01 \cdot 10^5$ (au 01/09/11)	$3,35 \cdot 10^4$	$3,88 \cdot 10^3$	59	3,80
^{252}Cf (n°2)	$1,99 \cdot 10^6$ (au 01/09/11)	$1,65 \cdot 10^5$	$1,91 \cdot 10^4$	12	$1,87 \cdot 10^1$
^{252}Cf (n°3)	$1,75 \cdot 10^6$ (au 25/11/20)	$1,64 \cdot 10^6$	$1,90 \cdot 10^5$	1,2	$1,86 \cdot 10^2$
AmBe	$3,68 \cdot 10^9$ (au 06/10/14)	$3,6 \cdot 10^9$	$2,30 \cdot 10^5$	/	/

Tableau 24. Caractéristiques des plaquettes de plutonium utilisées pour l'étude [Brizard2021].

Nature et épaisseur de la couche externe	Zircalloy, 1,2 mm
Age estimé	48 - 49 ans
Isotopie, en fraction massique	Données confidentielles
Masse équivalente de ^{240}Pu	0,783 g (ou 3,132 g pour les 4 plaquettes ensemble)
Ratio alpha avec la source AmBe ($2,30 \cdot 10^5 n.s^{-1}$)	288 (ou 72 pour les 4 plaquettes ensemble)

Les activités des sources de ^{252}Cf sont ici présentées de manière réactualisées à la date du 24 février 2021, c'est-à-dire la date de début de la campagne expérimentale avec le dispositif maquette pour fûts de déchets. En pratique, les mesures se sont étalées sur plusieurs semaines et la période radioactive du ^{252}Cf (2.647 ans [Laraweb]) a engendré une petite variation des activités de ces sources. Par exemple, l'activité de la source la plus active est passée de 1,64 MBq au 24 février 2021, à 1,60 MBq au 30 mars, date de fin de la campagne de mesures. Dans un souci de simplicité et de clarté de présentation des résultats, ces petites variations d'activités qui impactent très peu les ratios alpha et masses équivalentes de ^{240}Pu sont omises de la présentation des résultats expérimentaux mais elles ont bien été prises en compte pour les simulations présentées ultérieurement. Pour rester dans des limites réalistes de ratio alpha, les cas extrêmes rencontrés dans la pratique se trouvant approximativement vers 100 [Porcher2013], le plutonium est mesuré uniquement avec les 4 plaquettes ensemble.

Le signal gamma parasite provenant des produits de fission et d'activation potentiellement présents dans les fûts de déchets radioactifs est reproduit en utilisant deux sources étalons de ^{60}Co et de ^{137}Cs , dont les caractéristiques sont présentées dans le Tableau 25 :

Tableau 25. Caractéristiques des sources de rayonnements gamma utilisées pour l'étude.

	Activité initiale, en Bq	Activité réactualisée, en Bq
^{60}Co	$3,58 \cdot 10^6$ (au 02/07/19)	$2,88 \cdot 10^6$ (au 24/02/21)
^{137}Cs	$9,98 \cdot 10^6$ (au 15/09/10)	$7,84 \cdot 10^6$ (au 24/02/21)

L'étendue des configurations réalisables en laboratoire est limitée par les sources radioactives disponibles mais il sera possible d'étudier d'autres ratios alpha et niveaux d'émission gamma parasites par simulation numérique.

2.3 ELECTRONIQUE D'ACQUISITION DES DONNEES FASTER

Le nouveau système électronique utilisé pour les acquisitions est le système FASTER (*Fast Acquisition System for nuclEar Research*), conçu au Laboratoire de Physique Corpusculaire de Caen (LPC Caen) [FASTER]. Il permet de répondre à des besoins de physique nucléaire et de physique des particules pour des systèmes allant jusqu'à plusieurs centaines de voies de détection [FASTER]. Pour les expériences réalisées dans le cadre de cette thèse, 4 cartes mères d'acquisition de type SYROCO_AMC_C5 (Système Reconfigurable et Original de Communication) sont utilisées [Fontbonne2017], telle que celle présentée dans la Figure 51. Chaque carte mère dispose de deux emplacements pour accueillir deux cartes filles d'acquisition comprenant chacune deux voies de mesures. Les cartes filles utilisées, aussi illustrées en Figure 51, sont de type CARAS (CARte d'Acquisition du Signal) et peuvent accueillir différents modules de fonctions, chacun composé d'un micro-logiciel intégré et d'un logiciel d'utilisation avec une interface graphique adaptée. Elles permettent de numériser les impulsions analogiques sur 12 bits avec une fréquence d'échantillonnage de 500 MHz (soit 1 échantillon toutes les 2 ns). Les cartes CARAS sont capables d'accueillir 3 types de modules :

- un module spectrométrique (pour la spectrométrie gamma par exemple) ;
- un module de temps de vol avec la mesure des temps d'arrivée des particules ;
- un module QDC-TDC pour la mesure de la charge intégrée et du temps d'arrivée de chaque impulsion.

Pour nos mesures, le module de numérisation de type QDC-TDC est utilisé car les informations en temps et en énergie sont nécessaires. De la même manière qu'avec le système d'acquisition présenté dans le chapitre précédent, le calcul des temps de détection (*timestamp*) s'effectue à partir de l'échantillonnage de chaque impulsion par la méthode CFD (*Constant Fraction Discriminator*). Afin d'éviter de déclencher des impulsions à cause de fluctuations de bruit de fond électronique, un filtre passe-bas est appliqué sur chaque voie, pour lisser la ligne de base. Ce dernier a pour effet de rallonger les longueurs d'impulsions [FASTER_QDC_TDC] et de ce fait il a été nécessaire d'allonger le temps d'intégration de la charge à 220 ns (contre 60 ns avec le système CAEN, cf. chapitre 2).

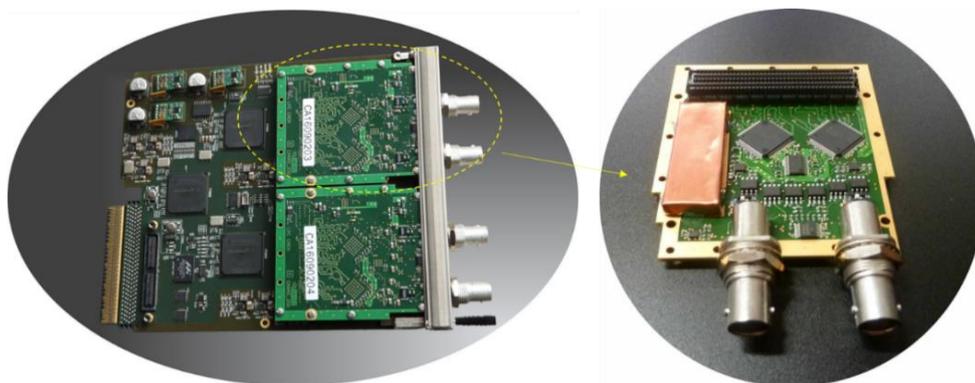


Figure 51. Illustration d'une carte mère d'acquisition, de type SYROCO_AMC_C5 (à gauche), comprenant deux cartes filles de type CARAS (à droite) [FASTER].

Quatre cartes mères sont donc utilisées pour numériser les signaux analogiques en provenance des 16 détecteurs du système (cf Figure 49). Les cartes mères sont synchronisées en temps grâce à une horloge externe présente sur le rack support tel que présenté en Figure 52.

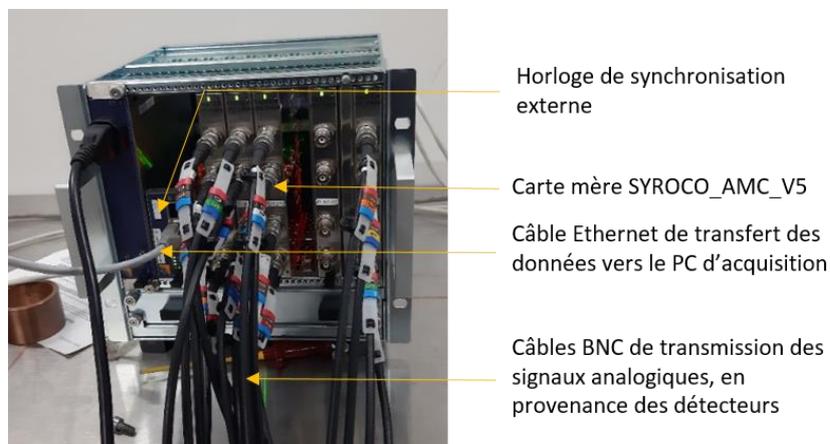


Figure 52. Vue complète de l'électronique d'acquisition FASTER compactée dans un rack.

Le logiciel de pilotage de l'acquisition et d'analyse des données de FASTER met à disposition de l'utilisateur plusieurs ensembles de fonctions [FASTER] :

- la bibliothèque de fonctions « fasterv2 » pour le logiciel de pilotage, à utiliser en lignes de commandes *Shell*. Cette bibliothèque permet de lancer l'exécution de diverses interfaces graphiques pour construire et modifier des fichiers de configurations, ou bien pour piloter les acquisitions de données ;
- le logiciel RHB (*ROOT Histogram Builder*), également développé au LPC Caen et spécialement conçu pour une utilisation avec FASTER, qui permet de construire des spectres en charge ou bien des histogrammes temporels de temps de vol, que ce soit pendant ou après une acquisition. Il met aussi à disposition des outils de type échelle de comptage et oscilloscope numérique pour chacune des voies, afin de monitorer en ligne les acquisitions de données et optimiser les paramètres de l'acquisition;
- La bibliothèque de fonctions « fasterac » qui permet de construire rapidement des scripts pour lire et traiter les fichiers binaires enregistrés en sortie des acquisitions.

En comparaison avec les prétraitements de données présentées dans le chapitre 2, quelques adaptations des codes de traitement de ces données d'acquisition FASTER ont été nécessaires.

2.4 EVALUATION DU BRUIT DE FOND

Le bruit de fond a été mesuré dans différentes configurations expérimentales (matrices organique et métallique, avec et sans écran de plomb) dans le but de le soustraire aux mesures avec les différentes sources étalon ou échantillons de plutonium. La casemate BIHAN ne présentant pas une contamination significative ni de stockage de sources à proximité, ce bruit de fond passif a une origine essentiellement naturelle avec les rayonnements gamma du ^{40}K et des chaînes naturelles de l'uranium 235 et surtout 238, ainsi que du thorium 232 présents dans les murs et le sol (BIHAN n'a pas de plafond et la casemate est située dans un hall de très grande hauteur), mais aussi les rayonnements d'origine cosmique. Notamment, les interactions des muons avec les éléments de numéro atomique élevé (fer, plomb) ainsi que, dans une moindre mesure, avec le béton (10 fois moins de neutrons produits présent en grande quantité dans la casemate [Kozlov2010]) peuvent générer des gerbes de particules secondaires et donc des coïncidences de multiplicité élevées [Kouzes2008] [Aguayo2011] [Passard2019]. Des mesures en absence de sources radioactives ont donc été réalisées dans la casemate BIHAN avec le système présenté en Figure 49 et avec présence ou non de l'écran de plomb et des deux matrices. Les ordres de multiplicités et les taux de singulets, doublets et triplets résultants d'une application de la méthode du registre à décalage pour les matrices métalliques, avec et sans écran de plomb, sont présentés dans les Tableau 26 et Tableau 27.

Tableau 26. Comptages des différents ordres de multiplicité et des singulets, doublets et triplets (plus leurs taux de comptage entre parenthèses) issus de la méthode du registre à décalage pour une mesure de bruit de fond pendant 30 min, avec matrice métallique et écran de plomb.

Bruit de fond mesuré le 25/02/2021				
	Sans rejet de diaphonie		Avec rejet de diaphonie pendant 30 ns	
	R+A (0-100 ns)	A (1000-1100 ns)	R+A (0-100 ns)	A (1000-1100 ns)
M0	20 066 329 ± 4 480	20 960 598 ± 1 721	20 047 958 ± 4 477	20 320 455 ± 4 508
M1	848 878 ± 921	21 532 ± 147	276 322 ± 526	21 432 ± 147
M2	52 961 ± 230	1 327 ± 36	14 734 ± 121	708 ± 27
M3	10 650 ± 103	87 ± 9	2 391 ± 49	40 ± 6
M4	2 666 ± 52	18 ± 4	727 ± 27	6 ± 2
M5	1 005 ± 32	4 ± 2	284 ± 17	1 ± 1
M6	480 ± 22	1 ± 1	118 ± 11	0
M7	254 ± 16	0	58 ± 8	0
M8	141 ± 12	0	29 ± 5	0
M9	83 ± 9	0	12 ± 3	0
M10	49 ± 7	0	7 ± 3	0
M11	29 ± 5	0	2 ± 2	0
M12	19 ± 4	0	1 ± 1	0
M13	12 ± 3	0	0	0
M14	7 ± 3	0	0	0
M15	5 ± 2	0	0	0
S	20 983 568 ± 5 901 (1,17.10⁴ s⁻¹)		20 342 642 ± 5 250 (1,13.10⁴ s⁻¹)	
D	985 782 ± 3 041 (5,48.10² s⁻¹)		295 843 ± 1 593 (1,64.10² s⁻¹)	
T	133 055 ± 4 195 (7,39.10¹ s⁻¹)		31 680 ± 1 560 (1,76.10¹ s⁻¹)	

Tableau 27. Comptages des différents ordres de multiplicité et des singulets, doublets et triplets (plus leurs taux de comptage entre parenthèses) issus de la méthode du registre à décalage pour une mesure de bruit de fond pendant 30 min, avec matrice métallique et sans écran de plomb.

Bruit de fond mesuré le 29/03/2021				
	Sans rejet de diaphonie		Avec rejet de diaphonie pendant 30 ns	
	R+A (0-100 ns)	A (1000-1100 ns)	R+A (0-100 ns)	A (1000-1100 ns)
M0	23 729 828 ± 4 871	24 337 983 ± 4 933	23 725 922 ± 4 871	24 017 531 ± 4 901
M1	590 711 ± 769	14 595 ± 121	298 532 ± 546	14 507 ± 120
M2	28 014 ± 167	568 ± 24	7 145 ± 85	376 ± 19
M3	3 803 ± 62	23 ± 5	642 ± 25	8 ± 3
M4	630 ± 25	4 ± 2	141 ± 12	2 ± 2
M5	142 ± 12	1 ± 1	33 ± 8	0
M6	32 ± 6	0	7 ± 3	0
M7	12 ± 3	0	2 ± 2	0
M8	1 ± 1	0	0	0
M9	1 ± 1	0	0	0
M10	0	0	0	0
M11	0	0	0	0
M12	0	0	0	0
M13	0	0	0	0
M14	0	0	0	0
M15	0	0	0	0
S	24 353 174 ± 5 917 (1,35.10 ⁴ s ⁻¹)		24 032 424 ± 5 552 (1,34.10 ⁴ s ⁻¹)	
D	645 850 ± 1 720 (3,59.10 ² s ⁻¹)		300 242 ± 1 086 (1,67.10 ² s ⁻¹)	
T	42 513 ± 904 (2,36.10 ¹ s ⁻¹)		9 982 ± 440 (5,55 s ⁻¹)	

Ces tableaux nous montrent que la majorité du signal de bruit de fond enregistré génère des impulsions non-coïncidentes qui peuplent les ordres 0 et qui n'auront pas d'impact significatif sur les mesures des sources. Il est cependant important de prendre en compte qu'un certain nombre d'événements de multiplicités élevées sont recensés, y compris après l'application d'un rejet de diaphonie sur des intervalles temporels de 30 ns, ce qui génère des taux de doublets et de triplets significatifs, respectivement 164 s⁻¹ et 17,6 s⁻¹ dans le cas de la matrice métallique avec l'écran de plomb. Sans l'écran de plomb, le taux de singulets se trouve être plus important (1,34.10⁴ contre 1,13.10⁴ s⁻¹ sans écran car le plomb protège en partie les détecteurs des rayonnements gamma émis dans le sol et les murs) mais les multiplicités d'ordre élevé sont beaucoup moins nombreuses sans plomb, avec par exemple un taux de triplets de 5,5 contre 18,3 s⁻¹ avec le plomb (avec rejet de la diaphonie), les taux de doublets étant, eux, similaires. Ces écarts peuvent s'expliquer par les réactions de spallation des muons cosmiques dans le plomb, qui génèrent des dizaines de neutrons dont l'énergie peut atteindre des dizaines de MeV, donc détectables en coïncidence avec des multiplicités élevées dans les nombreux détecteurs du système de mesure. Une étude récente avec un système de compteurs à ³He a montré qu'une grande partie des ordres de multiplicité supérieurs ou égaux à 2 (à partir de M2) sont effectivement dus aux réactions de spallation [Weinmann2016]. Ces multiplicités d'ordre élevé dans le signal du bruit de fond devront donc être prises en compte dans nos mesures.

En ce qui concerne la configuration avec la matrice organique, une mesure avec écran de plomb a également été effectuée pour comparaison avec la matrice métallique, voir Tableau 28. Les écarts avec les valeurs du Tableau 26 sont faibles mais on constate un bruit de fond légèrement inférieur à celui de la matrice métallique. Ceci pourrait s'expliquer, aux ordres élevés, si l'on considère que les interactions des muons cosmiques sont plus nombreuses dans le fer que dans le bois, mais le bruit de fond est aussi plus faible en termes de comptage total ou de taux de singulets. Les taux de singulets, doublets et triplets sont légèrement inférieurs ici avec la matrice bois qu'avec la matrice métallique dans la même configuration avec le plomb. Ceci pourrait s'expliquer par les fluctuations journalières du bruit de fond cosmique (de l'ordre de 0,5% en neutron entre les deux dates des mesures, telles que montrées dans la thèse précédente [Simony2017]), mais aussi par des fluctuations plus importantes liées aux variations de la pression atmosphérique qui peut modifier très sensiblement le bruit neutronique induit par les muons cosmiques [Passard2019], voir plus bas en Figure 53, et également le bruit de fond gamma liées au dégazage du ²²²Rn, dont les descendants sont des émetteurs intenses de rayonnements gamma (par ex. ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi, etc.) [Marchais2019]. Ces mesures de bruit de fond avec les matrices métallique et organique et l'écran de plomb ont en effet été réalisées à une semaine d'intervalle en raison des contraintes du planning expérimental, des remplacements des matrices et du déplacement des briques de plomb nécessaire (il n'y a pas de moyen de lavage dans la cellule BIHAN pour changer le colis sans démonter la ceinture de plomb, ce qui constitue une opération relativement lourde et longue, comme on peut l'imaginer au vu de la Figure 49).

Tableau 28. Comptages des différents ordres de multiplicité et des singulets, doublets et triplets (plus leurs taux de comptage entre parenthèses) issus de la méthode du registre à décalage pour une mesure de bruit de fond pendant 30 minutes, avec matrice organique et écran de plomb.

Bruit de fond mesuré le 09/03/2021				
	Sans rejet de diaphonie		Avec rejet de diaphonie pendant 30 ns	
	R+A (0-100 ns)	A (1000-1100 ns)	R+A (0-100 ns)	A (1000-1100 ns)
M0	18 178 780 ± 4 264	19 050 034 ± 4 365	18 161 364 ± 4 262	18 421 615 ± 4 292
M1	812 000 ± 901	17 928 ± 134	261 053 ± 511	17 838 ± 134
M2	58 498 ± 242	1 023 ± 32	14 092 ± 119	494 ± 22
M3	13 720 ± 117	75 ± 9	2 290 ± 48	27 ± 5
M4	3 395 ± 58	17 ± 4	684 ± 26	5 ± 2
M5	1 268 ± 36	4 ± 2	272 ± 16	1 ± 1
M6	600 ± 24	1 ± 1	121 ± 11	0
M7	323 ± 18	0	54 ± 7	0
M8	188 ± 14	0	30 ± 5	0
M9	111 ± 11	0	14 ± 4	0
M10	69 ± 8	0	5 ± 2	0
M11	44 ± 7	0	1 ± 1	0
M12	30 ± 5	0	0	0
M13	19 ± 4	0	0	0
M14	10 ± 3	0	0	0
M15	6 ± 2	0	0	0
S	19 069 082 ± 5 714 (1,06.10 ⁴ s ⁻¹)		18 439 980 ± 5 009 (1,02.10 ⁴ s ⁻¹)	
D	980 167 ± 3 227 (5,44.10 ² s ⁻¹)		282 807 ± 1 474 (1,57.10 ² s ⁻¹)	
T	166 911 ± 4 820 (9,27.10 ¹ s ⁻¹)		31 771 ± 1 235 (1,77.10 ¹ s ⁻¹)	

Le Tableau 29 montre des bruits de fond mesurés à un mois d'intervalle, avec et sans plomb, avec matrice métallique ou organique, pour illustrer le fait qu'il peut varier fortement selon la configuration de mesure ou selon la date.

Tableau 29. Variations du bruit de fond entre deux dates de mesure, en présence de la matrice métallique et de l'écran de plomb de 5 cm ou non, sans rejet de la diaphonie.

	Bruit de fond du 09/03/2021		Bruit de fond du 25/02/2021		Bruit de fond du 29/03/2021		Bruit de fond du 29/03/2021	
	30 min		30 min		30 min (après-midi)		30 min (matin)	
	Matrice organique avec Plomb		Matrice métallique avec Plomb		Matrice métallique avec Plomb		Matrice métallique sans Plomb	
	R+A	A	R+A	A	R+A	A	R+A	A
M0	18178780 ± 4 264	19050034 ± 4 365	20066329 ± 4 480	20960598 ± 1 721	19277510 ± 4 391	119695911 ± 4 292	23729828 ± 4 871	24337983 ± 4 933
M1	812 000 ± 901	17 928 ± 134	848 878 ± 921	21 532 ± 147	409 310 ± 640	17 838 ± 134	590 711 ± 769	14 595 ± 121
M2	58498 ± 242	1 023 ± 32	52 961 ± 230	1 327 ± 36	22 918 ± 151	494 ± 22	28 014 ± 167	568 ± 24
M3	13720 ± 117	75 ± 9	10650 ± 103	87 ± 9	3 777 ± 61	27 ± 5	3 803 ± 62	23 ± 5
M4	3 395 ± 58	17 ± 4	2 666 ± 52	18 ± 4	606 ± 25	5 ± 2	630 ± 25	4 ± 2
M5	1 268 ± 36	4 ± 2	1 005 ± 32	4 ± 2	125 ± 11	1 ± 1	142 ± 12	1 ± 1
M6	600 ± 24	1 ± 1	480 ± 22	1 ± 1	24 ± 5	0	32 ± 6	0
M7	323 ± 18	0	254 ± 16	0	5 ± 2	0	12 ± 3	0
M8	188 ± 14	0	141 ± 12	0	1 ± 1	0	1 ± 1	0
M9	111 ± 11	0	83 ± 9	0	0	0	1 ± 1	0
M10	69 ± 8	0	49 ± 7	0	0	0	0	0
M11	44 ± 7	0	29 ± 5	0	0	0	0	0
M12	30 ± 5	0	19 ± 4	0	0	0	0	0
M13	19 ± 4	0	12 ± 3	0	0	0	0	0
M14	10 ± 3	0	7 ± 3	0	0	0	0	0
M15	6 ± 2	0	5 ± 2	0	0	0	0	0
S	19 069 082 ± 5 714 (1,06.10 ⁴ s ⁻¹)		20 983 568 ± 5 901 (1,17.10 ⁴ s ⁻¹)		19 714 278 ± 5 287 (1,10.10 ⁴ s ⁻¹)		24 353 174 ± 5 917 (1,35.10 ⁴ s ⁻¹)	
D	980 167 ± 3 227 (5,44.10 ² s ⁻¹)		985 782 ± 3 054 (5,48.10 ² s ⁻¹)		459 356 ± 1 494 (2,55.10 ² s ⁻¹)		645 850 ± 1 720 (3,59.10 ² s ⁻¹)	
T	166 911 ± 4 820 (9,27.10 ¹ s ⁻¹)		135 759 ± 4 270 (7,54.10 ¹ s ⁻¹)		39 218 ± 799 (2,18.10 ¹ s ⁻¹)		44 748 ± 904 (25 s ⁻¹)	

Les différences les plus importantes au niveau des ordres de multiplicité élevés ne semblent pas dus à la configuration de mesure comme le suggère la comparaison des cas « matrice métallique ou organique avec plomb », d'une part (deux premiers bruits de fond), et « matrice métallique avec ou sans plomb », d'autre part (deux derniers cas). Une autre cause envisagée est la variation du flux de muons cosmiques, la Figure 53 montrant un exemple extrême d'effet de la pression atmosphérique sur le comptage neutronique total lors de la tempête Sandy. Ce phénomène s'est peut-être produit dans certaines de nos mesures, avec une moindre amplitude, comme pourrait l'indiquer l'écart de 6 % sur le comptage total entre les deux configurations identiques (matrice métallique avec plomb). Une autre cause possible est la diaphonie électronique, comme nous le verrons ci-dessous, mais à ce stade la cause principale de la présence d'ordres de multiplicité aussi élevés n'a pas pu être identifiée avec certitude.

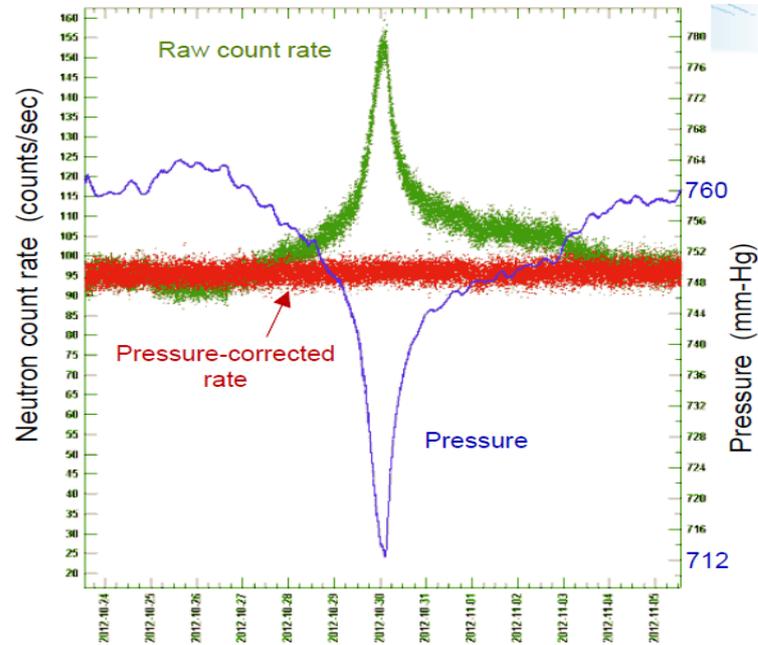


Figure 53. Variation du taux de comptage total des neutrons avec la pression atmosphérique, en fonction de la date de la mesure (13 jours consécutifs en 2012, aux Etats-Unis [Goldhagen2015]).

Pour tenter de mieux comprendre les différences observées dans les mesures de bruit de fond, la Figure 54 compare les taux d'occurrence des événements de forte multiplicité (ici à partir de M7) dans les bruits de fond du 25/02 et du 29/03, c'est-à-dire pour une configuration expérimentale inchangée (matrice métallique avec écran de plomb). Sur ces chronogrammes sont représentés les instants de détection de la 1^{ère} impulsion qui ouvre la fenêtre de coïncidence (suivie d'au minimum 7 autres impulsions) pour chacun de ces événements.

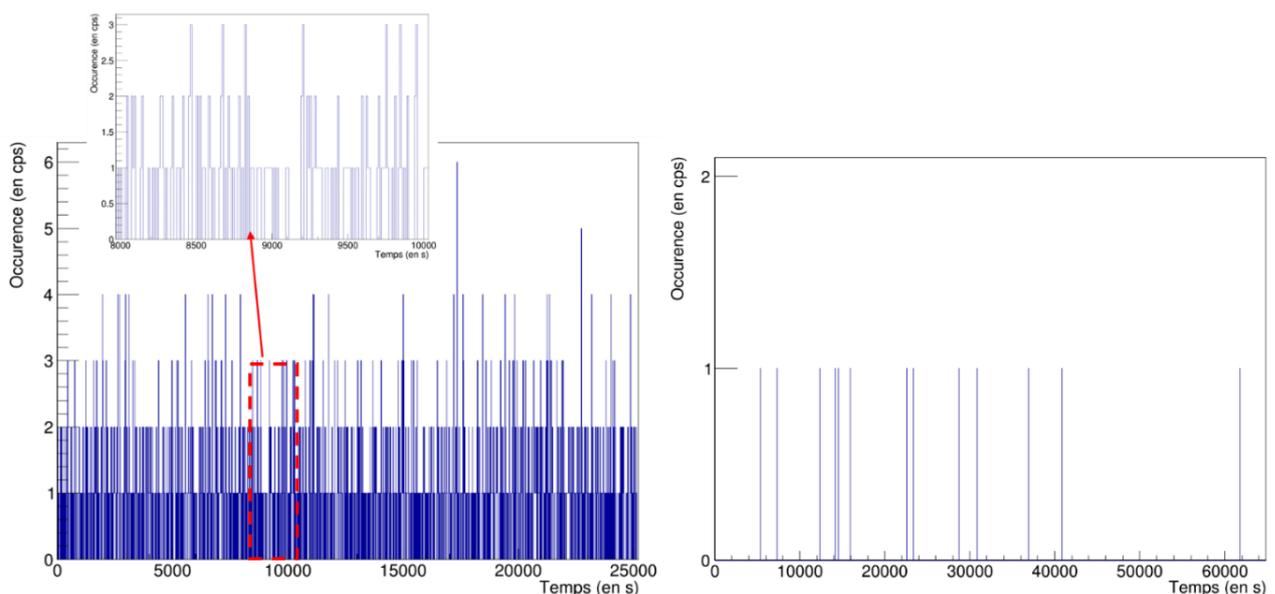


Figure 54. Chronogrammes des instants de déclenchement des multiplicités d'ordre supérieur ou égal à 7 pour la mesure de bruit de fond du 25/02 (à gauche) et du bruit de fond du 29/03 (à droite) dans la configuration de la matrice métallique avec l'écran de plomb de 5 cm d'épaisseur. Le temps par canal est de 0,1 s.

La mesure de bruit de fond du 25/02/2021, comme attendu d'après les données du Tableau 29, présente un taux bien plus important d'évènements de multiplicité 7 ou plus (environ $1/12 \text{ s}^{-1}$) que celle du 29/03/2021, pour laquelle ces évènements sont très rares (seulement 13 pour une mesure de 18 heures). La répartition de ces évènements est homogène pour ces deux mesures et ne permet pas de mettre en évidence de délais systématiques pouvant indiquer un problème potentiel lié au système d'acquisition (rebonds, diaphonie électronique entre voies de mesure). La Figure 55 présente d'histogramme des écarts temporels entre ces évènements pour la mesure du 25/02, qui est caractéristique d'une loi de Poisson (ajustement avec une fonction exponentielle).

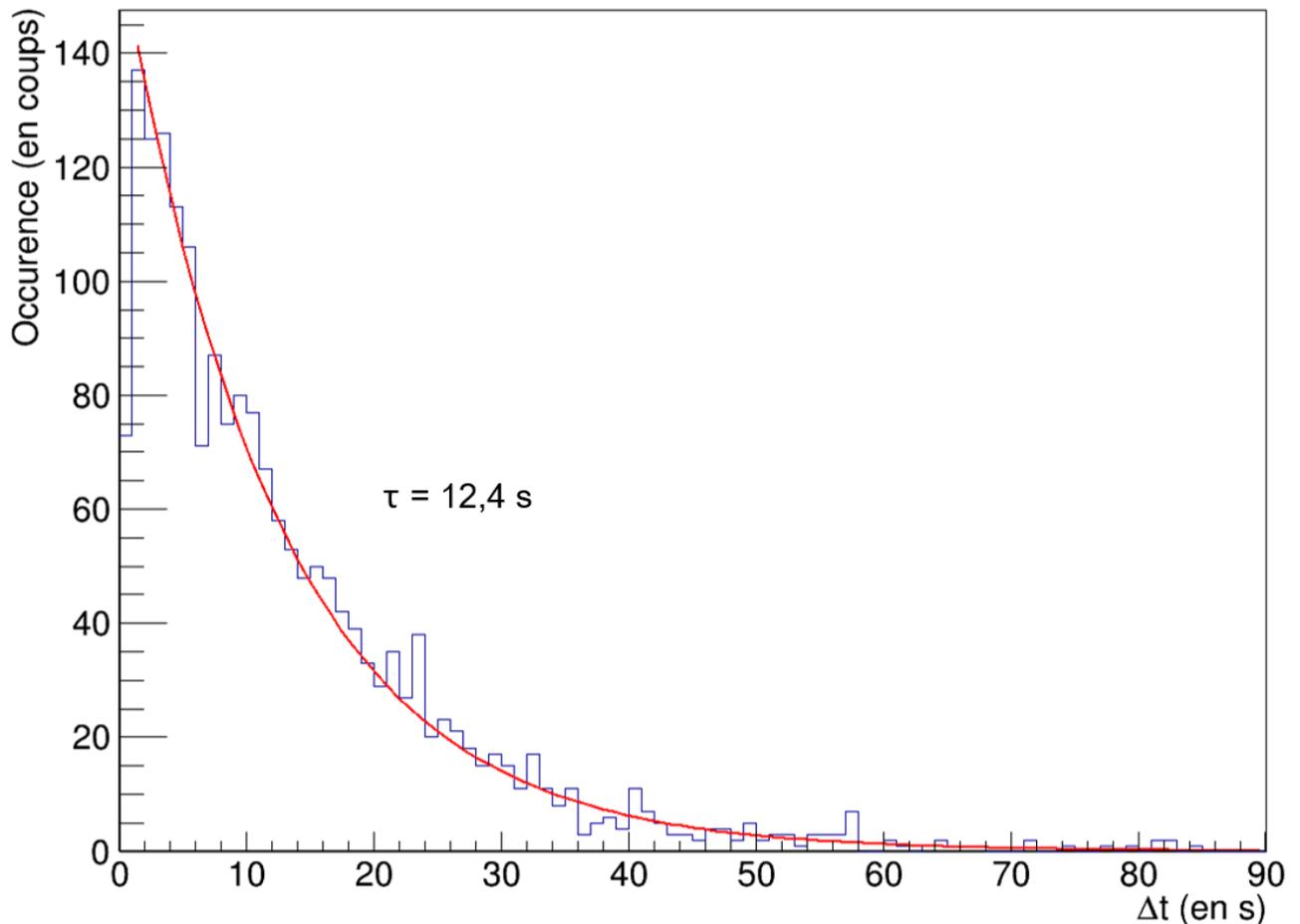


Figure 55. Histogramme des intervalles temporels entre chaque évènement de multiplicités 7 ou plus dans les données mesurées du bruit de fond du 25/02/21.

Les Figure 56 et Figure 57 permettent de visualiser plus précisément la composition de ces évènements de multiplicité élevée, à titre d'exemple les neufs premiers de chaque mesure présentant un ordre de multiplicité supérieur ou égal à 7. On constate la présence d'impulsions de très grande énergie (plusieurs dizaines de MeV) probablement dues à des muons cosmiques (énergie de l'ordre du GeV) qui déposent environ 2 MeV/cm dans les scintillateurs [Crispin67]. L'observation de ces gerbes d'impulsions lors des deux mesures de bruit de fond ne permet pas de mettre en évidence de différence notable, ni de biais liés à une éventuelle diaphonie électronique entre couples de voies. Les voies appartenant aux mêmes cartes filles dans l'électronique FASTER (cartes CARAS, voir Figure 51) sont représentées avec une même couleur. Les gerbes de la mesure du 25/02 présentant les fortes multiplicités ne semblent pas a priori particulières (écarts de temps systématiques ou couples de voies repérables). Quelle que soit l'origine de ces évènements de multiplicité élevée, la soustraction de ce bruit de fond très variable peut engendrer des incertitudes importantes sur le comptage net du plutonium dans les différents ordres de multiplicités. Ces observations sont notamment à prendre en compte pour les comparaisons expérience/calcul à venir, notamment lorsque les sources ou échantillons de plutonium mesurés n'apportent qu'un excédent de signal faible par rapport au bruit de fond, comme nous le verrons par exemple pour les plaquettes de plutonium au centre des matrices métallique ou organique. Notons néanmoins que chaque série de mesures présentée dans ce chapitre présente les mêmes caractéristiques, en terme de peuplement des ordres élevés de multiplicité, que le bruit de fond mesuré qui est soustrait pour obtenir le signal net. A terme, il conviendra de filtrer ces évènements atypiques dans les données brutes du signal et du bruit de fond avant de traiter ces données.

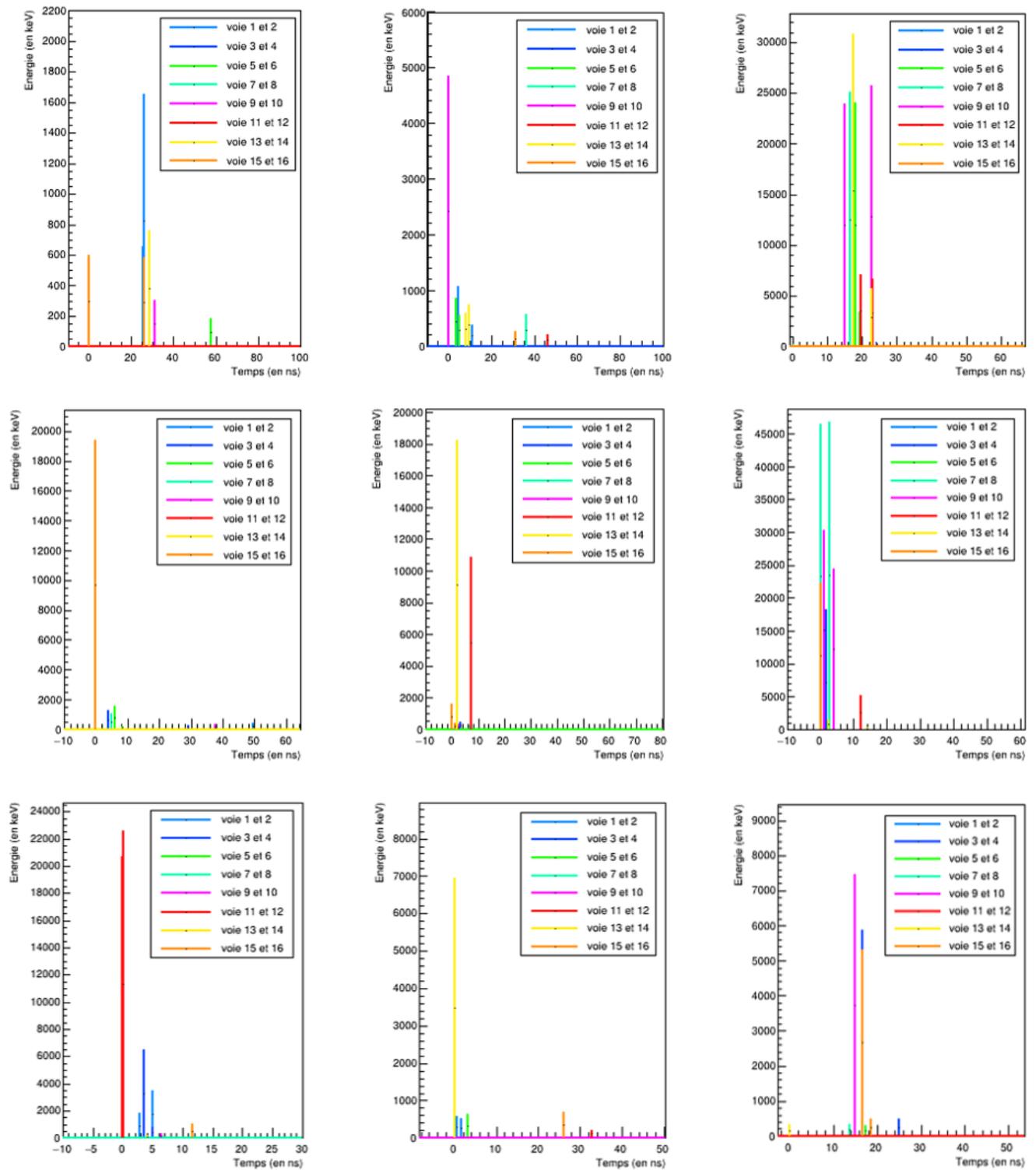


Figure 56. Détail des neuf premières multiplicités d'ordre 7 et plus dans les trains d'impulsions du bruit de fond du 25/02. Les amplitudes de chaque impulsion indiquent la valeur de l'énergie déposée dans le scintillateur plastique, en keVee.

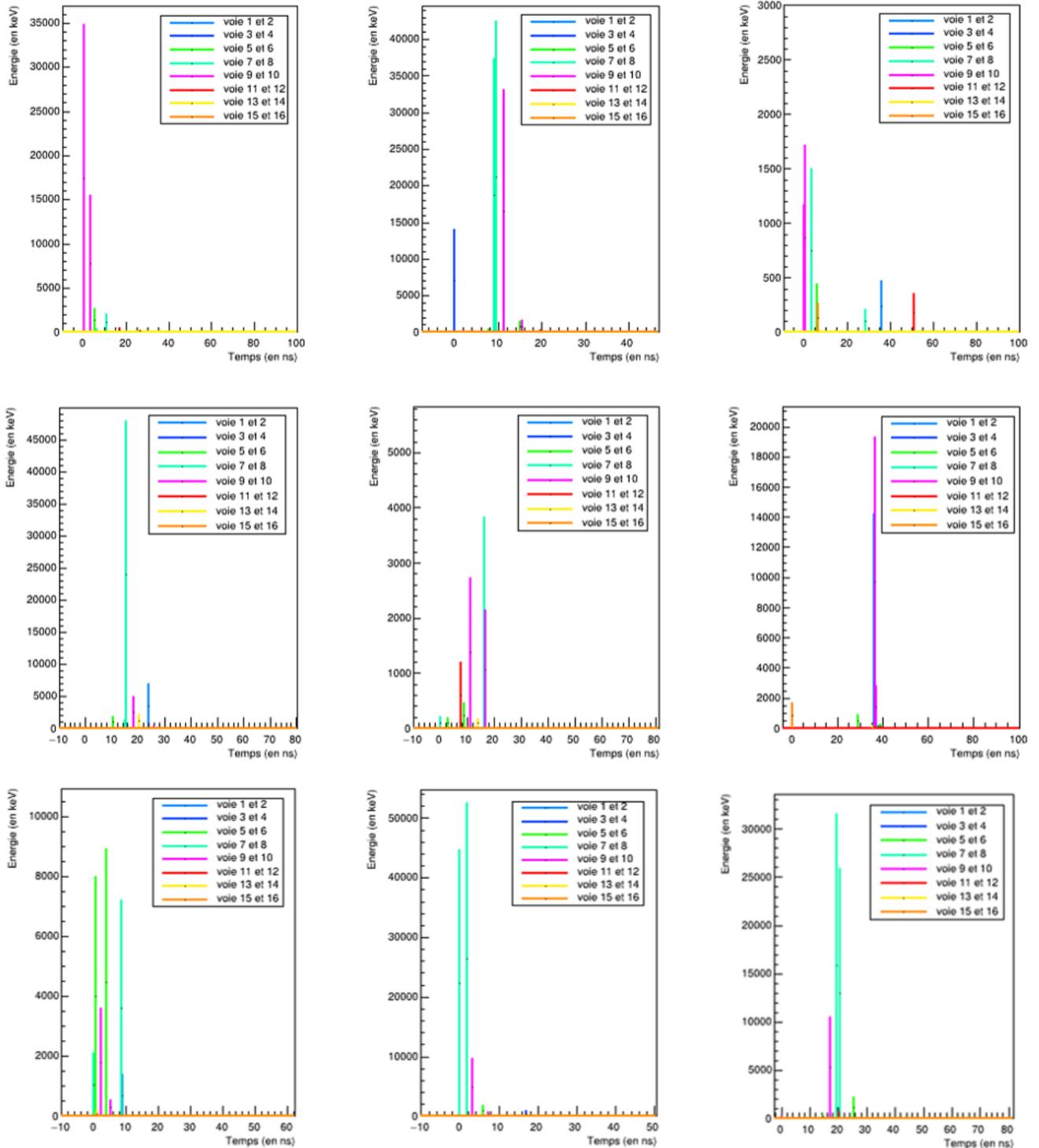


Figure 57. Détail des neuf premières multiplicités d'ordre 7 et plus dans les trains d'impulsions du bruit de fond du 29/03. Les amplitudes de chaque impulsion indiquent la valeur de l'énergie déposée dans le scintillateur plastique, en keVee.

La Figure 58 présente les histogrammes temporels en deux dimensions pour les mesures de bruit de fond de 30 min du 25 février et du 29 mars 2021 (matrice métallique, en présence du plomb). Une grande majorité des coups de bruit de fond sont heureusement situés au niveau de l'origine des histogrammes (coïncidences de type $\gamma\gamma\gamma$ et $n\nu\nu$), c'est-à-dire en dehors de la sélection temporelle de la ROI (signal utile des coïncidences $\gamma n\nu$ de fission). La ROI ne comprend ainsi que 2 à 4% des événements de ces deux mesures, soit un taux d'événements parasites de $0,8 \text{ s}^{-1}$ dans le cas du bruit de fond du 29 mars (avec peu d'évènements de multiplicité élevée) et de $1,8 \text{ s}^{-1}$ pour celui du 25 février (nombreux évènements de forte multiplicité). Cette différence peut s'avérer déterminante pour les mesures de faibles masses de plutonium (voir §3.2.2, Tableau 38 et Tableau 39) et pour le calcul des limites de détection (voir §3.6.3).

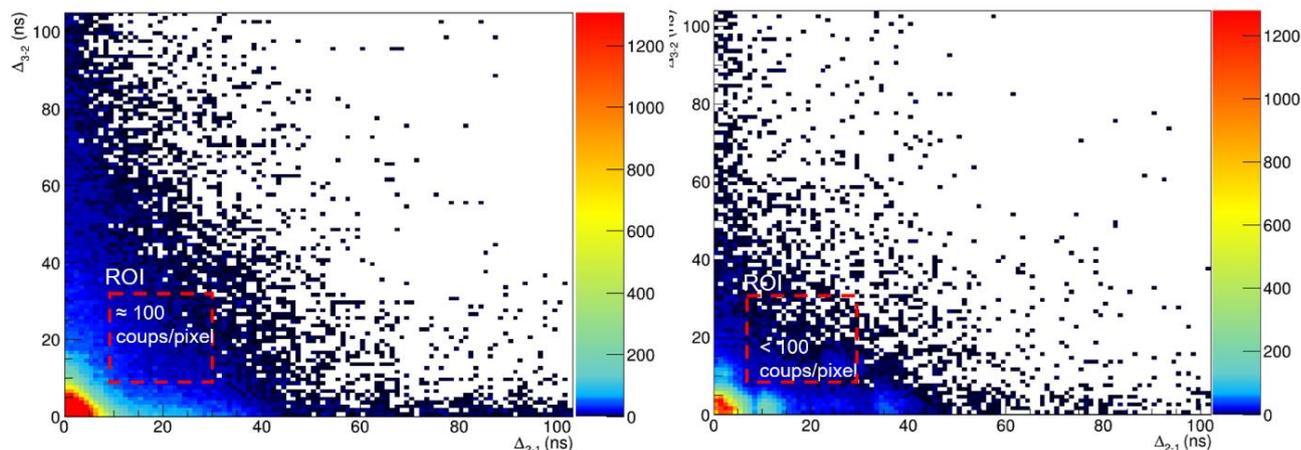


Figure 58. Histogrammes temporels des mesures de bruit de fond du 25 février 2021 (à gauche) et du 29 mars 2021 (à droite), en présence de la matrice métallique et de l'écran de plomb de 5 cm.

3. MESURES ET SIMULATIONS AVEC LES MATRICES ORGANIQUE ET METALLIQUE

3.1 EFFICACITE DE DETECTION

De manière générale, et dans le cadre des mesures neutroniques des coïncidences et des multiplicités, des efficacités de détection élevées (30 à 50% [Ensslin1991_11]) sont nécessaires pour avoir accès aux ordres élevés des multiplicités des particules émises par les fissions. En effet, la probabilité de détecter k particules parmi n particules émises et de même nature s'écrit de la manière suivante :

$$P(n, k) = \frac{n!}{(n-k)!k!} \varepsilon^k (1-\varepsilon)^{n-k} \quad (36)$$

Où ε est l'efficacité de détection pour un type de particule donné. Cette formule nous indique que les probabilités de détecter 2 ou 3 particules évoluent respectivement comme ε^2 et ε^3 , approximativement. L'efficacité de détection décroît donc très rapidement avec les ordres élevés des multiplicités.

Classiquement, l'efficacité totale de détection des neutrons est calculée comme le rapport entre le nombre de neutrons source détectés et le nombre de neutrons source émis. Dans notre cas, il est difficile d'évaluer cette efficacité de détection neutronique de manière expérimentale car les scintillateurs plastiques sont sensibles à la fois aux neutrons et aux rayonnements gamma, sans possibilité de les discriminer. Les efficacités de détection seront donc calculées par simulation d'une source de ^{252}Cf avec MCNPX-PoliMi, de manière séparée pour les neutrons et les rayonnements gamma, dans chaque configuration expérimentale (présence ou non des matrices et de l'écran de plomb). La reconstruction de la réponse des détecteurs s'effectuera de la même manière que dans le chapitre précédent, à ceci près que des traitements supplémentaires doivent être apportés :

- un rejet parfait de diaphonie est appliqué sur les données simulées, pour être certain qu'une particule source ne produira qu'une seule impulsion dans le système de détection. Ceci évite un biais de surestimation des efficacités de détection ;
- dans le système de détection, seules les particules sources (primaires) sont considérées pour le comptage. En effet, de nombreuses particules secondaires peuvent être produites dans le système, comme par exemple par les captures neutroniques des noyaux ^1H qui génèrent respectivement l'émission d'un neutron supplémentaire et d'une raie gamma supplémentaire à 2,2 MeV. De même, cette prise en compte évite un biais de surestimation de l'efficacité totale de détection.

Tableau 30. Efficacités de détection des neutrons d'une source de ^{252}Cf calculées avec MCNPX-PoliMi.

Configuration géométrique		Nombre de neutrons source émis	Nombre de neutrons détectés	Efficacité totale de détection (en comptage total)
Sans matrice	Sans plomb	5 741 629	1 494 306 ± 1 222	26,02 ± 0,02 %
	Avec écran de plomb (5 cm)		1 402 958 ± 1 184	24,43 ± 0,02 %
Matrice métallique	Sans plomb		1 445 501 ± 1 202	25,18 ± 0,02 %
	Avec écran de plomb (5 cm)		1 338 578 ± 1 157	23,31 ± 0,02 %
Matrice organique	Sans plomb		646 035 ± 804	11,25 ± 0,01 %
	Avec écran de plomb (5 cm)		545 572 ± 739	9,50 ± 0,01 %

Tableau 31. Efficacités de détection des rayonnements gamma de fission d'une source de ²⁵²Cf calculées avec MCNPX-PoliMi.

Configuration géométrique		Nombre de rayonnements gamma source émis	Nombre de rayonnements gamma détectée	Efficacité totale de détection (en comptage total)
Sans matrice	Sans plomb	12 199 563	2 468 674 ± 1 571	20,23 ± 0,02 %
	Avec écran de plomb (5 cm)		95 019 ± 308	0,78 ± 0,01%
Matrice métallique	Sans plomb		1 767 735 ± 1 330	14,49 ± 0,02 %
	Avec écran de plomb (5 cm)		64 675 ± 254	0,53 ± 0,01 %
Matrice organique	Sans plomb		2 076 111 ± 1 441	17,02 ± 0,02 %
	Avec écran de plomb (5 cm)		76 278 ± 276	0,63 ± 0,01 %

Le Tableau 30 montre que la matrice métallique et l'écran de plomb n'ont que peu d'influence sur l'efficacité de détection des neutrons du fait de leur faible caractère thermalisant (matériaux métalliques, numéro atomique moyen élevé). En revanche, la matrice organique, bien que de densité faible ($d = 0,3$), dispose d'un fort pouvoir thermalisant et se montre très pénalisante quant à l'efficacité totale de détection des neutrons, qui est réduite d'un facteur supérieur à 2. Ces efficacités sont, en toute rigueur, insuffisantes pour les mesures des multiplicités qui exigent plutôt des efficacités comprises entre 30% et 50% (cf. chapitre 1). Cependant, cette exigence s'applique surtout aux systèmes qui n'ont accès qu'à la multiplicité neutronique des fissions spontanées, et dans le cadre de cette thèse, la relativement faible efficacité de détection est compensée par le fait que les rayonnements gamma utiles, de fortes multiplicités, contribuent également aux coïncidences utiles. Il serait possible d'optimiser l'efficacité en adaptant le seuil de coupure en énergie ou en implémentant des détecteurs au-dessus et en dessous du fût, par exemple. Le Tableau 31 montre que l'efficacité totale de détection des rayonnements gamma est inférieure à celle des neutrons lorsque le système est vide (sans matrice et sans plomb). L'écran de plomb diminue très fortement cette efficacité gamma (de plus d'un facteur 20) en raison de sa densité, de son numéro atomique moyen et de son épaisseur. La matrice métallique, de densité bien plus faible que le plomb (0,5 contre 11,35), impacte de manière bien moins importante l'efficacité de détection des rayonnements gamma (environ 25 % de diminution relative), et la matrice organique encore moins (environ 15 %).

A partir des Tableau 30 et Tableau 31, il est possible de calculer une « efficacité globale de détection des fissions spontanées » en pondérant les efficacités de détection des neutrons et des rayonnements gamma avec leurs nombres moyens émis par fission spontanée :

$$\varepsilon_{fissions} = \frac{(N_{\gamma}\varepsilon_{\gamma}) + (N_n\varepsilon_n)}{(N_{\gamma} + N_n)} \quad (37)$$

où N_{γ} et N_n sont les nombres moyens de rayonnements gamma et de neutrons émis par une fissions spontanée pour un radionucléide donné, ε_{γ} et ε_n sont les efficacités totales de détection des rayonnements gamma et des neutrons pour une configuration de mesure donnée. L'efficacité globale de détection des fissions ainsi estimée est donnée dans le Tableau 32 pour les sources de ²⁵²Cf et de ²⁴⁰Pu dans les 5 configurations mentionnés précédemment, en considérant un spectre en énergie identique pour les neutrons (spectre de Maxwell du ²⁵²Cf) et les rayonnements gamma (Figure 1 du Chapitre 1) pour les deux sources.

Tableau 32. Efficacité globale de détection des fissions spontanées du ²⁵²Cf et du ²⁴⁰Pu.

Configuration géométrique		Efficacité globale de détection des fissions	
		²⁵² Cf ($\bar{\nu}_n = 3,76$ et $\bar{\nu}_{\gamma} = 7,8$) [Ensslin1991_11] [Gozani1981]	²⁴⁰ Pu ($\bar{\nu}_n = 2,16$ et $\bar{\nu}_{\gamma} = 8,2$) [Ensslin1991_11] [Oberstedt2016]
Sans matrice	Sans plomb	22,1 %	21,4 %
	Avec écran de plomb (5 cm)	8,47 %	5,71%
Matrice métallique	Sans plomb	18,0%	16,7%
	Avec écran de plomb (5 cm)	7,94 %	5,28 %
Matrice organique	Sans plomb	15,1 %	15,8 %
	Avec écran de plomb (5 cm)	3,52%	2,48 %

Les briques de plomb de 5 cm d'épaisseur montrent un impact extrêmement important sur la détection des rayonnements gamma dans le système. Dans le cadre de la nouvelle méthode d'analyse proposée dans cette thèse, la détection des rayonnements gamma des fissions spontanées est primordiale pour générer les différences de temps de vol avec les neutrons des mêmes fissions respectives. Dans notre configuration avec la matrice métallique et les briques de plomb, cas le plus pénalisant en rayonnements gamma, l'efficacité de détection gamma est de 0,53%. En reprenant l'équation (36) et en considérant une fission spontanée qui émet 8 rayonnements gamma corrélés, il n'y a que 4% de chances de détecter un des rayonnements gamma ($P(8,1)$). Seuls 4% des fissions spontanées permettent donc d'appliquer la méthode (région des coïncidences $\gamma n n$), indépendamment de l'efficacité de détection des neutrons. Il y a un peu plus de 95,8% de chances qu'aucun des 8 rayonnements gamma ne soit détectés et les autres possibilités se répartissent sur les 0,2% restants (2 détections gamma, 3 détections, etc.). Dans l'optique d'une industrialisation du système, il sera donc important de trouver un compromis sur l'épaisseur de plomb pour stopper suffisamment de rayonnements gamma parasites (désexcitations suite aux émissions α et β , produits de fissions, produits d'activation, etc.) tout en conservant assez de rayonnements gamma prompts de fission spontanée. Du point de vue de l'expérimentation en laboratoire, seules des briques de plomb de 5 cm d'épaisseur étaient disponibles pour les essais, mais le Tableau 33 montre à quel point cet écran est pénalisant pour ces rayonnements gamma de fission.

Tableau 33. Efficacités de détection des rayonnements gamma prompts de fission d'une source de ^{252}Cf calculées avec MCNPX-PoliMi avec différentes épaisseurs d'écran de plomb devant les détecteurs.

Epaisseur de plomb dans le système		Nombre de rayonnements gamma source émis	Nombre de rayonnements gamma détecté	Efficacité de détection en comptage total
Matrice métallique	Sans plomb	12 199 563	1 767 735 \pm 1 330	14,49 \pm 0,02 %
	1 cm		859 935 \pm 927	7,05 \pm 0,01 %
	2 cm		447 598 \pm 669	3,67 \pm 0,01 %
	3 cm		256 575 \pm 507	2,10 \pm 0,01 %
	4 cm		153 399 \pm 392	1,26 \pm 0,01 %
	5 cm		95 019 \pm 308	0,53 \pm 0,01 %

L'outil de discrimination des coïncidences présenté dans le Chapitre 2 permet d'exclure une bonne partie des coïncidences dues aux rayonnements gamma parasites, notamment les accidentelles situées le long des axes dans les cartes temporelles 2D. De ce fait, 1 ou 2 cm de plomb pourraient suffire, à confirmer par une étude d'optimisation par simulation numérique.

3.2 COMPARAISONS EXPERIENCE/CALCUL

3.2.1 Modélisation MCNPX-PoliMi de la géométrie et des sources

La modélisation du système de mesure est représenté en Figure 59.

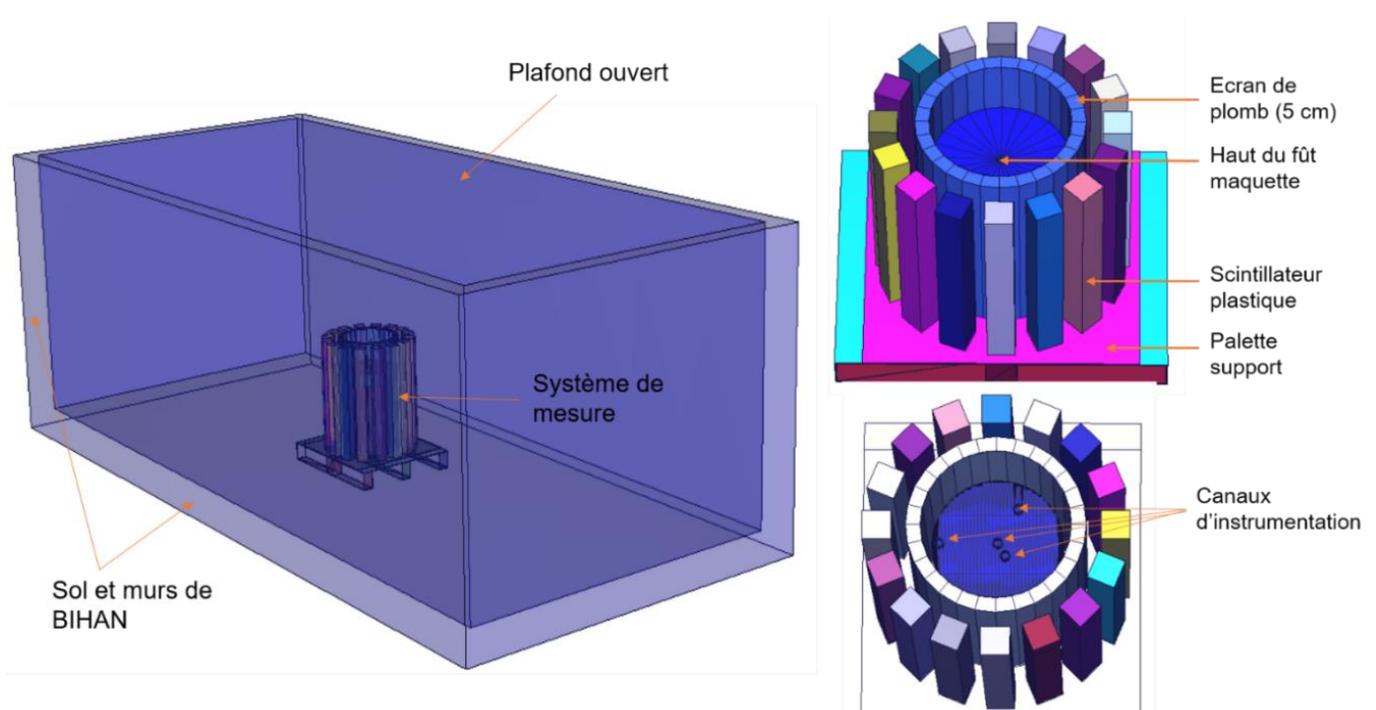


Figure 59. Modélisation du système de mesure au sein de la casemate BIHAN.

De même que lors des premiers essais expérimentaux de démonstration dans DANAIDES, les murs et le sol de la casemate BIHAN, où se déroulent l'ensemble des essais présentés dans ce chapitre, sont modélisés. A la différence de la casemate DANAIDES, BIHAN ne présente pas de toit, ce qui peut modifier la contribution des muons cosmiques. Les autres matériels présents dans la casemate (photomultiplicateurs, câbles, portes câbles, tables) sont quant à eux ignorés pour simplifier le modèle.

Dans le cadre de ce chapitre, les sources de ^{252}Cf , ^{60}Co et d'AmBe sont modélisées de la même manière que dans le chapitre 2. La source de ^{137}Cs émet une raie gamma de 661,57 keV dans 85% des désintégrations β . Elle ne dispose pas de rayonnements corrélés et ne sera donc pas simulée avec la déclaration de source PoliMi (IPOL (1) = 0), mais avec la carte classique SDEF de MCNP. En ce qui concerne les plaquettes de plutonium, plusieurs termes sources sont à considérer :

- les fissions spontanées, dont le nombre est fonction de la masse équivalente de ^{240}Pu dans les plaquettes, modélisées avec IPOL (1) = 3 ;
- les rayonnements gamma de désexcitation suite aux désintégrations α et β , très majoritaires par rapport aux rayonnements gamma prompts des fissions spontanées, qui seront modélisés avec la carte SDEF à partir d'une distribution des raies les plus intenses de l'ensemble des isotopes du plutonium et du ^{241}Am , et uniquement celles d'énergie supérieure au seuil de coupure à 100 keV.

Dans le cadre de la simulation des plaquettes de plutonium, le Tableau 34 résume les raies les plus importantes à considérer pour chaque isotope, ainsi que les taux d'émissions par unité de masse.

Tableau 34. Taux d'émission des raies gamma et X supérieures à 100 keV émises par les 4 plaquettes de plutonium [Laraweb].

Isotope	Taux de désintégration spécifique ($\text{s}^{-1}.\text{g}^{-1}$)	Energie des raies gamma (keV)	Taux d'émission spécifique des raies gamma ($\text{s}^{-1}.\text{g}^{-1}$)	Taux de rayonnements gamma émis (s^{-1})
^{238}Pu	$6,333.10^{11}$	152,72	$6,05.10^6$	$4,81.10^5$
		766,38	$1,39.10^5$	$1,11.10^4$
^{239}Pu	$2,294.10^9$	129,29	$1,44.10^5$	$4,29.10^6$
		375,04	$3,60.10^4$	$1,07.10^6$
		413,71	$3,42.10^4$	$1,02.10^6$
		116,26	$1,33.10^4$	$3,96.10^5$
		203,55	$1,28.10^4$	$3,81.10^5$
		345,01	$1,28.10^4$	$3,81.10^5$
		332,84	$1,12.10^4$	$3,33.10^5$
		115,38	$1,05.10^4$	$3,14.10^5$
		393,14	$9,61.10^3$	$2,86.10^5$
		380,19	$6,92.10^3$	$2,06.10^5$
^{240}Pu	$8,395.10^9$	144,20	$6,54.10^3$	$1,95.10^5$
		104,24	$5,86.10^5$	$1,81.10^6$
^{241}Pu	$3,824.10^{12}$	160,31	$3,38.10^4$	$1,04.10^5$
		208	$2,04.10^7$	$6,61.10^6$
		148,57	$7,15.10^6$	$2,32.10^6$
		111,23	$6,84.10^6$	$2,22.10^6$
		103,68	$3,86.10^6$	$1,25.10^6$
		114,93	$2,26.10^6$	$7,31.10^5$
^{242}Pu	$1,452.10^8$	159,96	$2,47.10^5$	$7,99.10^4$
		-	-	$< 10^3$
^{241}Am	$1,269.10^{11}$	102,98	$2,47.10^7$	$6,83.10^6$
		125,30	$5,20.10^6$	$1,44.10^6$
TOTAL	-	-	-	$3,45.10^7$

La raie très intense à 59 keV du ^{241}Am , qui émet à elle seule $4,56.10^{10}$ rayonnements gamma par seconde dans les 4 plaquettes, est ici ignorée car en dessous du seuil de coupure de 100 keV. De plus, les briques de plomb de 5 cm absorbent intégralement les rayonnements gamma de cette énergie [XMuDAt1998].

3.2.2 Comparaison expérience/calcul avec la méthode du registre à décalage

Un bon accord expérience-calcul a été observé au chapitre 2 dans le cas d'un système de mesure simple et qui ne comportait pas de fût maquette de déchets, ni de matrices, ni d'écran de plomb. Afin de s'assurer une nouvelle fois

que les modélisations numériques correspondent à la réalité de la mesure, de nouvelles comparaisons sont effectuées avec la configuration présentée en Figure 49. Dans un premier temps, les expériences et les simulations sont comparées avec la méthode historique du registre à décalage pour le dénombrement des ordres de multiplicités. Les fenêtres temporelles du registre sont les mêmes que précédemment, c'est-à-dire [0-100 ns] pour (R+A) et [1000-1100 ns] pour (A). Les Tableaux 35, Tableau 36 et Tableau 37 présentent les comparaisons expérience/calcul pour la source la plus active de ^{252}Cf ($n^{\circ}3$) ainsi que pour les sources d'AmBe et ^{60}Co en présence de la matrice métallique et de la matrice organique. Les singulets, doublets et triplets sont donnés ici en taux de comptage pour une comparaison plus facile de la simulation avec l'expérience, les comptages des registres aux différents ordres de multiplicité étant donnés en Annexe 4 et en Annexe 5. On peut noter dans cette annexe que pour certains ordres de multiplicité élevés, des comptages négatifs peuvent apparaître après soustraction du bruit de fond car celui-ci peut présenter des fluctuations journalières significatives, voir §2.4. Il conviendrait, pour une application industrielle, de mesurer quotidiennement le bruit de fond et même, si possible, avant ou après chaque mesure de colis. Si ces mesures n'ont pas été effectuées le même jour, comme ce fut le cas ici, des événements de multiplicité élevée dus au rayonnement cosmique (voir §2.4 sur les gerbes) peuvent apparaître en quantité importante dans l'une ou l'autre de ces mesures (colis ou bruit de fond), faussant le signal du colis après soustraction du bruit de fond.

Tableau 35. Comparaison expérience calcul pour une source de ^{252}Cf au centre de la matrice métallique ou organique.

	Matrice métallique		Matrice organique	
	^{252}Cf ($n^{\circ}3$), 5 min (simulation)	^{252}Cf ($n^{\circ}3$), 30 min (expérience)	^{252}Cf ($n^{\circ}3$), 5 min (simulation)	^{252}Cf ($n^{\circ}3$), 30 min (expérience)
S (en s^{-1})	$6,07 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$	$5,60 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$	$3,66 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$	$4,37 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$
D (en s^{-1})	$2,05 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$	$1,22 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$	$5,46 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$	$6,04 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$
T (en s^{-1})	$(4,66 \pm 0,01) \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$	$(1,96 \pm 0,01) \cdot 10^3$	$(6,39 \pm 0,04) \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$	$(6,26 \pm 0,05) \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$

Tableau 36. Comparaison expérience calcul pour la source AmBe au centre de la matrice métallique ou organique.

	Matrice métallique		Matrice organique	
	AmBe, 5 min (simulation)	AmBe, 30 min (expérience)	AmBe, 5 min (simulation)	AmBe, 30 min (expérience)
S (en s^{-1})	$8,38 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$	$7,25 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$	$6,10 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$	$5,93 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$
D (en s^{-1})	$6,13 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$	$4,71 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$	$4,25 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$	$4,02 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$
T (en s^{-1})	$(2,85 \pm 0,02) \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$	$(2,26 \pm 0,04) \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$	$(2,00 \pm 0,02) \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$	$(2,22 \pm 0,05) \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$

Tableau 37. Comparaison expérience calcul pour la source de ^{60}Co posée au-dessus de la matrice métallique ou organique.

	Matrice métallique		Matrice organique	
	^{60}Co , 5 min (simulation)	^{60}Co , 30 min (expérience)	^{60}Co , 5 min (simulation)	^{60}Co , 30 min (expérience)
S (en s^{-1})	$9,04 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$	$1,15 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$	$9,60 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$	$1,33 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$
D (en s^{-1})	$4,70 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$	$4,45 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$	$5,02 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$	$5,39 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$
T (en s^{-1})	$(7,82 \pm 0,22) \cdot 10^1 \text{ s}^{-1}$	$(6,36 \pm 0,42) \cdot 10^1 \text{ s}^{-1}$	$(8,48 \pm 0,24) \cdot 10^1 \text{ s}^{-1}$	$(8,85 \pm 0,50) \cdot 10^1 \text{ s}^{-1}$

Le Tableau 35 montre des écarts significatifs pour la source de ^{252}Cf dans la matrice métallique. Les taux de singulets sont du même ordre ($6,07 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$ par simulation contre $5,60 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$ en mesure) mais les taux de doublets ($2,05 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$ contre $1,22 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$) et de triplets ($4,66 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$ contre $1,96 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$) sont nettement surestimés par la simulation. Avec la matrice organique, les écarts sont moindres : $3,66 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$ vs. $4,37 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$ pour les singulets, $5,46 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$ vs. $6,04 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$ pour les doublets et $6,39 \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$ vs. $6,26 \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$ pour les triplets. Les écarts expérience/calcul peuvent s'expliquer en partie par l'incertitude sur la densité apparente des matrices et leur homogénéité imparfaite, notamment en raison des canaux d'instrumentation où sont placées les sources qui constituent des « voies de fuite » potentielles. Ces canaux ont bien été modélisés par des tubes (voir Figure 59) mais le remplissage par les pièces métalliques ou de bois peut s'avérer irrégulier à leur proximité (voir Figure 50). Pour simplifier le modèle numérique, un matériau métallique ou organique homogène, avec une densité apparente de 0,5 ou 0,3, respectivement, a été décrit. La précision sur ces densités apparentes est elle-même limitée, de l'ordre de 15%, de même que celle sur la position des sources au sein des canaux (ou même posée sur la matrice pour le ^{60}Co , à côté d'un canal, voir Figure 50). L'incertitude sur la densité de la matrice est étudiée par simulation et présentée en Annexe 3. Une autre incertitude concerne la densité apparente de la ceinture de plomb, qui a été constituée en juxtaposant des briques chevronnées avec des petits joints entre elles en raison de la courbure (voir Figure 49 et Figure 50). Dans le modèle numérique, une densité apparente de 10,5 a été prise en compte. En outre, le plomb contient un peu d'antimoine (typiquement 4% massiques) pour le durcir, ce qui réduit un peu la densité de l'alliage Pb-Sb (environ 11 au lieu de 11,35 qui est la densité théorique). D'un côté le plomb a un effet multiplicateur sur les neutrons rapides du fait des réactions ($n,2n$), et de l'autre il atténue les rayonnements gamma. Cet effet sera à étudier dans le cadre d'une étude plus large sur l'épaisseur de plomb optimale pour limiter le bruit gamma

mais sans ajouter trop de coïncidences parasites dues aux réactions (n,2n) en cas de fortes émissions (α, n). De la même manière que pour la densité de la matrice, une étude de l'influence de la densité de la ceinture de plomb est présentée en Annexe 3. Les densités prises en compte dans cette annexe (0,25 à 0,35 pour la matrice de bois, 0,4 à 0,6 pour celle de fer, 9,7 à 11,35 pour la ceinture de plomb) ont été définies de façon enveloppe pour couvrir aussi l'incertitude sur les données nucléaires utilisées par MCNP pour le transport des neutrons (sections efficaces de diffusion élastique, inélastique et autres réactions comme (n,2n) dans le plomb) et rayonnements gamma (coefficients d'atténuation massiques). Dans ce même domaine des données nucléaires, rappelons que le spectre et le nombre de rayonnements gamma prompts et retardés de fission sont mal connus, comme déjà évoqué au Chapitre 2. Enfin, du côté de l'électronique, la précision sur le réglage du seuil de coupure bas vers 100 keVee peut aussi être la cause d'une incertitude significative sur les comptages. Le seuil électronique a d'abord été fixé sur l'amplitude des impulsions (en mV) de sorte à éliminer la raie à 59,5 keV du ^{241}Am , responsable d'un fort taux de comptage, puis le seuil de 100 keVee a été appliqué en post-traitement des données après étalonnage en énergie des détecteurs. Il existe sur l'énergie de ce dernier une incertitude relativement élevée liée à cet étalonnage en énergie basé sur les fronts Compton des raies à 661,7 keV du ^{137}Cs , 1173 - 1332 MeV du ^{60}Co et 4439 keV de l'AmBe. L'influence d'une variation du seuil en énergie de ± 40 keV est présentée dans l'Annexe 3, montrant un effet tout à fait significatif.

Dans le cas de la source AmBe, dans le Tableau 36, la simulation surestime les taux de singulets, doublets et triplets pour la matrice métallique mais l'accord est globalement satisfaisant, et il est même très bon pour la matrice organique. Au-delà de l'incertitude sur les matrices évoquée ci-dessus, on peut aussi signaler celle supplémentaire sur le spectre et l'intensité d'émission neutronique due au vieillissement de la source AmBe (fabriquée en 2014) par bombardement alpha de l'alliage AmBe [Geiger1975].

En ce qui concerne la source de ^{60}Co dans le Tableau 37, un écart significatif est observé sur les singulets, de l'ordre de 30 à 40% selon la matrice, qui peut venir du fait que la source est simplement posée au-dessus de la matrice (voir Figure 50) et que les épaisseurs réelles de matériaux traversées jusqu'aux compteurs, ainsi que la position de la source, ne sont pas fidèlement reproduites dans le modèle numérique (où la source est centrée au-dessus de la matrice et du tube central d'instrumentation). L'accord est bon sur les taux de doublets et de triplets dans les deux matrices mais il faut rester prudent étant donné l'écart sur les singulets. L'effet d'un biais sur l'efficacité de détection gamma se répercute en effet au carré sur les doublets et au cube sur les triplets, ce qui peut compenser d'autres causes d'écart.

Au-delà de toutes ces causes potentielles d'écart liées à la précision des modélisations, on peut aussi noter des artefacts d'origine électronique pouvant influencer significativement le taux de comptage des singulets et des multiplicités d'ordre 0. En effet, des rebonds d'impulsions ont été observés, dans certaines mesures, entre 200 et 400 ns après le déclenchement d'une voie de mesure (pendant les 200 premières nanosecondes l'intégration de charge paralyse la voie) et ces problèmes ne sont pas dus à de mauvaises adaptations d'impédance. En effet, de nombreux essais ont été réalisés avec des adaptateurs d'impédances sur les voies de mesure les plus pénalisées par le phénomène, avec visualisation du signal à l'oscilloscope, mais les impulsions parasites ont persisté. L'implémentation du filtre passe-bas (cf. §2.3) a en grande partie permis de résoudre ce problème, en limitant les fluctuations de la ligne de base susceptibles de franchir le seuil de coupure bas, mais le phénomène est resté présent, à un niveau moindre, comme l'illustre la Figure 60 avec la courbe de Rossi-alpha et une carte temporelle 2D d'une mesure longue à très faible taux de comptage (bruit de fond), pour bien le mettre en évidence.

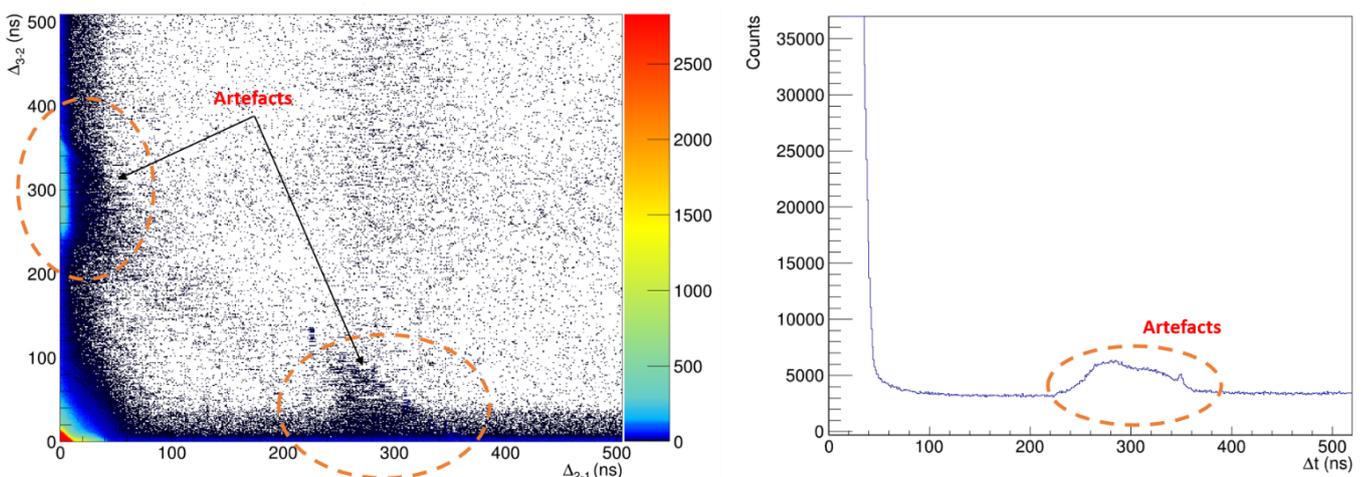


Figure 60. Artefacts présents sur un histogramme temporel (à gauche) et la courbe de Rossi-alpha (à droite) d'une mesure de 7 h de bruit de fond (matrice métallique + écran de plomb).

Jusqu'à présent, seules les sources de ^{252}Cf ont été utilisées pour représenter le signal des fissions spontanées, mais pour se rapprocher des mesures réelles de fûts de déchets plutonifères, des mesures avec 4 plaquettes de

plutonium ont été réalisées avec le positionnement décrit au §2.1, dont le Tableau 38 présente la comparaison expérience/calcul.

Tableau 38. Comparaison expérience-calcul pour les 4 plaquettes de plutonium « au centre » (voir texte) de la matrice métallique et de la matrice organique.

	Matrice métallique		Matrice Organique	
	4 plaquettes Pu (simulation, 30 s)	4 plaquettes Pu (mesure, 30 min)	4 plaquettes Pu (simulation, 30 s)	4 plaquettes Pu (mesure, 30 min)
S (en s⁻¹)	1,17.10 ³ s ⁻¹	2,10.10 ³ s ⁻¹	(7,83 ± 0,02).10 ² s ⁻¹	1,91.10 ³ s ⁻¹
D (en s⁻¹)	(2,19 ± 0,02).10 ² s ⁻¹	(5,43 ± 0,02).10 ² s ⁻¹	64,4 ± 8,1 s ⁻¹	(1,32 ± 0,03).10 ² s ⁻¹
T (en s⁻¹)	27,4 ± 0,7 s ⁻¹	97,3 ± 3,1 s ⁻¹	5,06 ± 2,60 s ⁻¹	7,88 ± 3,90 s ⁻¹

Des écarts importants sont observés dans le cas des deux matrices pour les taux de singulets, doublets et triplets. De manière inattendue, les ordres élevés de multiplicité (au-delà de M8) présentés en Annexe 1 comportent de nombreux coups, même après soustraction de la contribution de bruit de fond. De tels ordres de multiplicité ne peuvent être obtenus qu'avec des événements dus aux rayons cosmiques (spallations). Il est donc possible que le bruit de fond ait significativement varié entre le 29 et le 30 mars 2021, dates des mesures du bruit de fond et des plaquettes, en cas de dépression atmosphérique. Les variations de bruit de fond présentées dans le Tableau 29 suggèrent que de telles variations sont possibles, mais seule une mesure de bruit de fond immédiatement avant ou après la mesure du plutonium aurait permis de valider cette hypothèse. A titre d'essai, le Tableau 39 présente le signal net du plutonium après soustraction du bruit de fond plus élevé mesuré le 25 février 2021 dans la même configuration. On obtient alors des écarts beaucoup plus faibles entre expérience et simulation avec 1,40.10³ s⁻¹ vs. 1,18.10³ s⁻¹ pour les singulets, 2,50.10² s⁻¹ vs. 2,19.10² s⁻¹ pour les doublets et 4,59.10¹ s⁻¹ vs. 2,74.10¹ s⁻¹ pour les triplets. Une mesure du bruit de fond juste avant ou après celle de chaque colis réel sera donc impérative, ainsi que le filtrage des événements de multiplicité élevée dans les données mesurées.

Tableau 39. Correction de la mesure du plutonium avec le bruit de fond mesuré le 25 février 2021, en présence de la matrice métallique et de l'écran de plomb de 5 cm.

	4 plaquettes Pu, mesure brute de 30 min (30/03/21)	4 plaquettes Pu, signal net après soustraction du bruit de fond du (25/02/21)
S (en s⁻¹)	1,31.10 ⁴ s ⁻¹	1,40.10 ³ s ⁻¹
D (en s⁻¹)	(7,98 ± 0,02).10 ² s ⁻¹	(2,50 ± 0,03).10 ² s ⁻¹
T (en s⁻¹)	(1,21 ± 0,03).10 ² s ⁻¹	(4,59 ± 0,38).10 ¹ s ⁻¹

In fine, nous considérons à ce stade que les simulations des mesures des plaquettes de plutonium dans les matrices étalon donnent des ordres de grandeur cohérents avec l'expérience, compte tenu des causes d'incertitude évoquées plus haut. On peut aussi mentionner ici l'incertitude sur la description géométrique des plaquettes, notamment leur cœur de plutonium, qui est mal connue car ces échantillons sont anciens. L'incertitude associée avait été étudiée dans le cadre de la thèse [Simony2017], montrant un effet potentiellement significatif sur l'auto-absorption des rayonnements gamma prompts de fission (de l'ordre de 30%, mais juste pour illustrer l'ampleur potentielle de cet effet avec un cas d'école arbitraire, en faisant varier la géométrie du cœur elle-même mal connue, donc pas nécessairement plus proche de la réalité).

3.2.3 Comparaison expérience/calcul avec la méthode de discrimination temporelle des coïncidences

La comparaison des histogrammes temporels à deux dimensions, qui permettent la discrimination des différents types de coïncidences rencontrées, est présentée pour les mesures avec la source la plus active de ²⁵²Cf (n°3), les plaquettes de plutonium ainsi que de des sources de ⁶⁰Co et de ¹³⁷Cs, dans les deux matrices.

Dans un premier temps, la Figure 61 montre l'histogramme temporel 2D mesuré d'une source de ²⁵²Cf dans la matrice organique, mais sans la présence de l'écran de plomb devant les détecteurs.

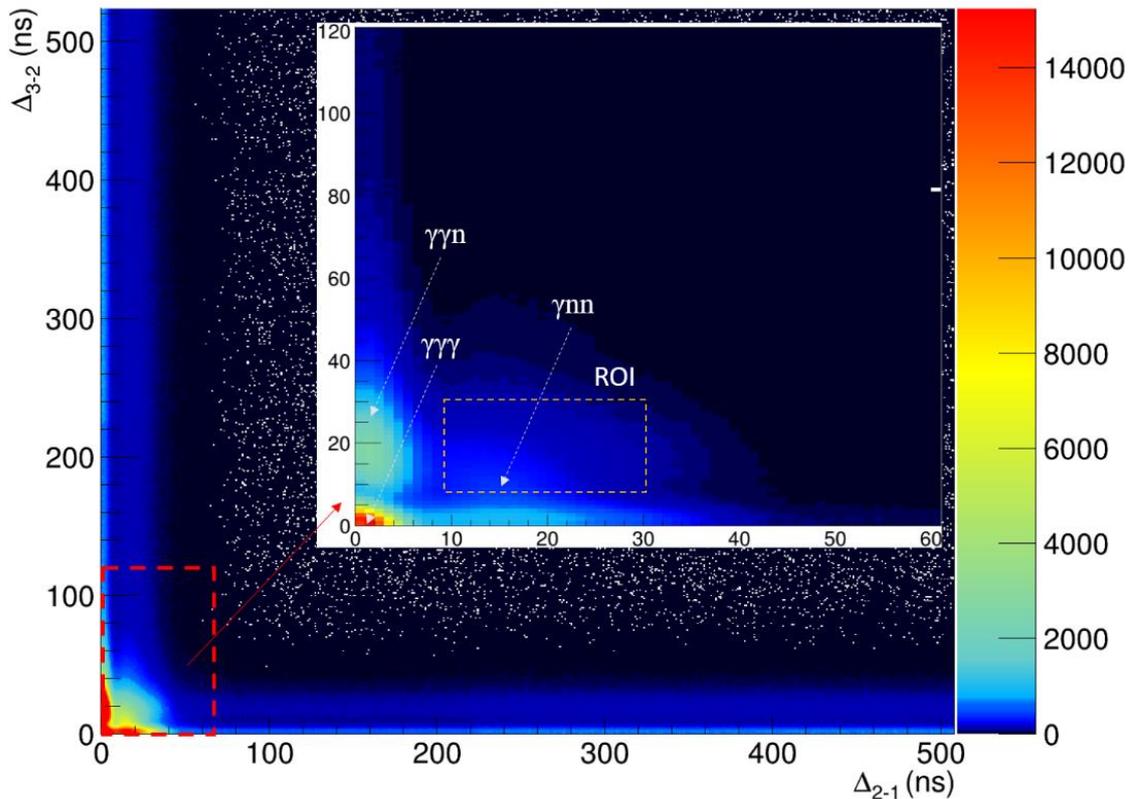


Figure 61. Histogramme temporel à deux dimensions issue d'une mesure de 5 min avec une source de ^{252}Cf (n°3) dans la matrice organique et sans écran de plomb devant les détecteurs.

Cet histogramme permet de vérifier que la modération des neutrons n'engendre pas de dégradations dans la discrimination temporelle des régions d'intérêt, qui sont toujours identifiables. L'absence de l'écran de plomb permet de conserver suffisamment de statistique pour faire ressortir la région d'intérêt (cadre en pointillés jaunes). La Figure 62 présente les histogrammes des mesures et simulations de la source ^{252}Cf (n°3), mais cette fois-ci lorsque l'écran de 5 cm de plomb est présent.

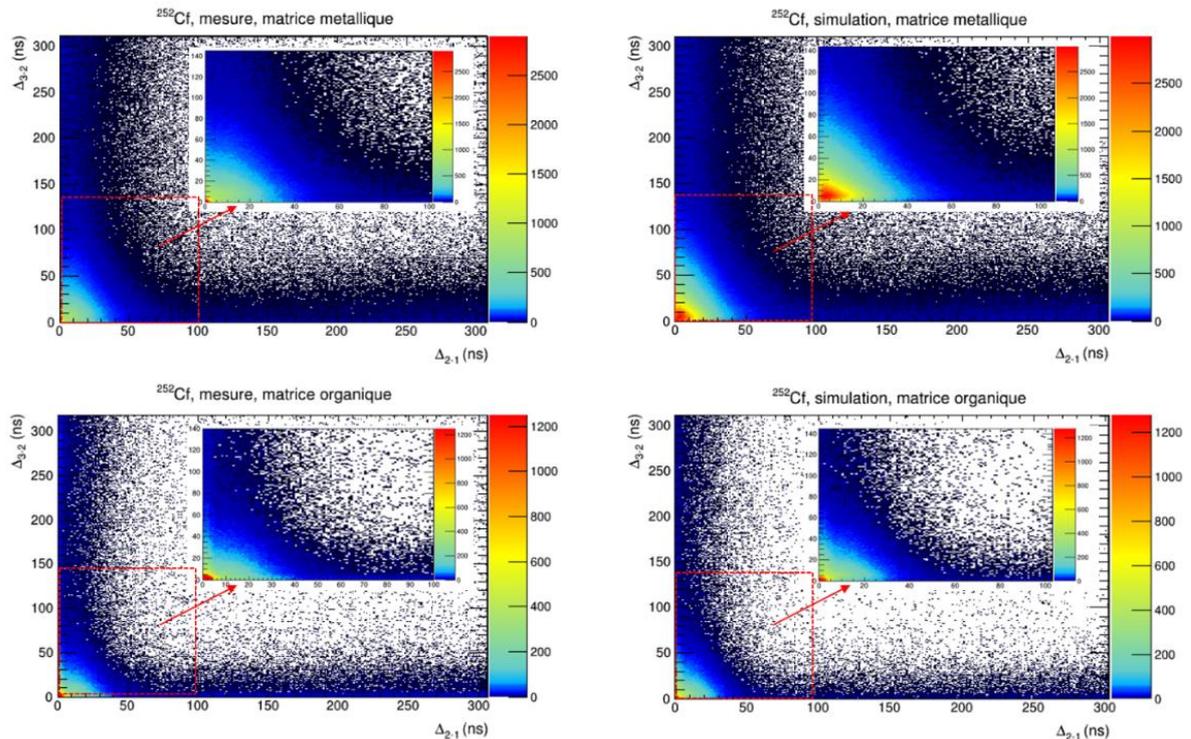


Figure 62. Histogrammes 2D obtenus en mesure (à gauche) et en simulation (à droite) pour la source de ^{252}Cf (n°3) au centre de la matrice métallique (en haut) et de la matrice organique (en bas). L'écran de plomb est ici présent devant les détecteurs. Les échelles de couleurs sont ajustées pour présenter les mêmes gradients en mesure et en simulation. Les histogrammes de mesure sont nets de bruit de fond.

La perte de la statistique de comptage due à la présence de l'écran de plomb de 5 cm, qui atténue fortement les rayonnements gamma prompts de fission, ne permet plus de distinguer les régions des différents types de coïncidences. La statistique est encore plus faible dans le cas de la matrice organique qui modère et rend indétectable une partie importante des neutrons prompts de fission. Néanmoins, les mesures et simulations ne représentent ici que 5 min de comptage et il reste un nombre important de coup dans la ROI. Du point de vue quantitatif, la comparaison expérience calcul sur ces comptages dans la ROI est présentée un peu plus loin (Tableau 40, Tableau 41 et Tableau 42 suivant les histogrammes temporels 2D de l'AmBe et du ^{60}Co).

La Figure 63 présente les mêmes histogrammes 2D, pour la source AmBe dans les deux matrices et avec l'écran de plomb.

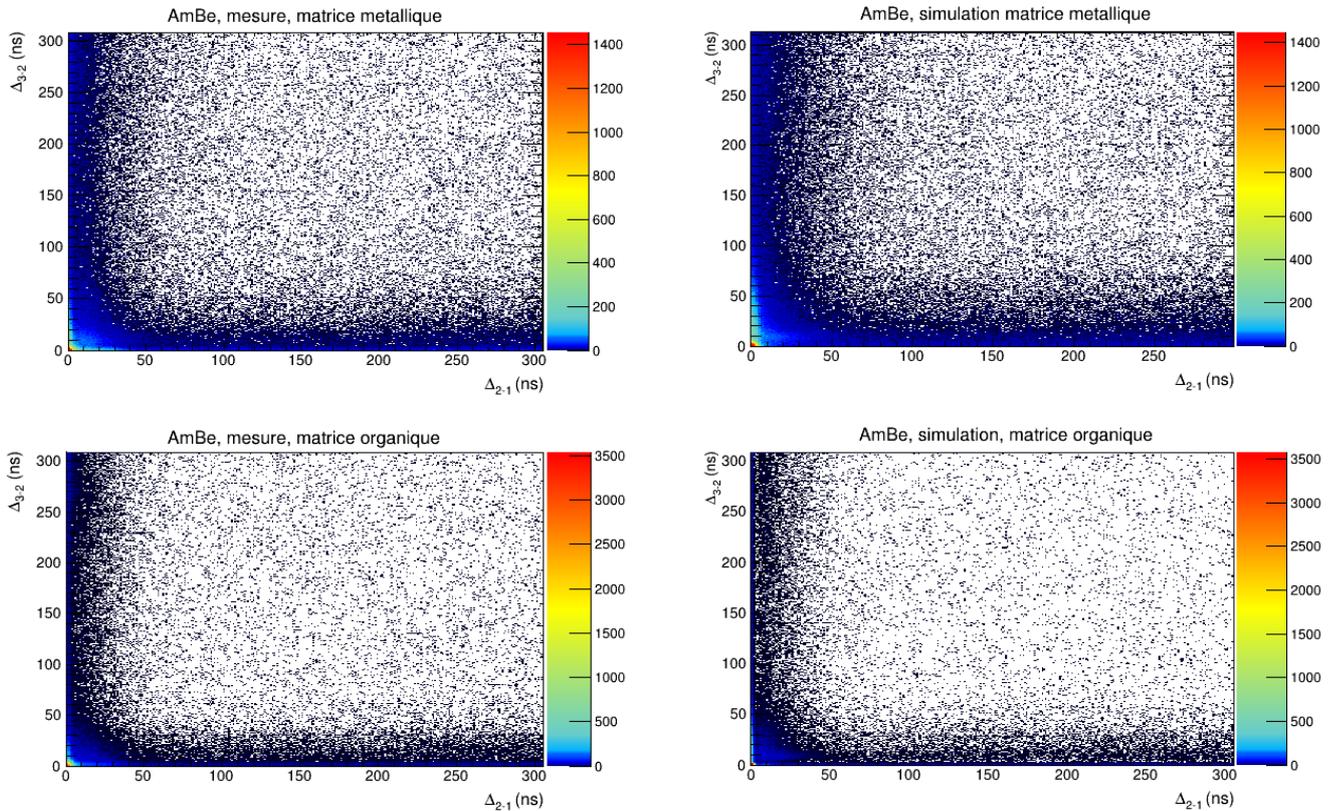


Figure 63. Histogrammes 2D obtenus en mesure (à gauche) et en simulation (à droite) pour la source d'AmBe au centre de la matrice métallique (en haut) et de la matrice organique (en bas), avec écran de plomb. Les échelles de couleurs sont ajustées pour présenter les mêmes gradients en mesure et en simulation. Les histogrammes de mesure sont nets de bruit de fond.

De manière similaire aux histogrammes du ^{252}Cf présentés en Figure 62, les régions temporelles identifiées dans le chapitre 2, à savoir les zones des coïncidences $\gamma\gamma\gamma$ et $\gamma\gamma n$ propres à cette source, sont moins visibles à cause de l'écran de 5 cm de plomb. Les cartes sont ici montrées sans rejet de diaphonie mais les applications numériques qui suivent la prendront en compte avec différents intervalles temporels de rejet. De manière qualitative, sur l'allure de ces cartes temporelles 2D, le comportement des sources neutroniques en mesure est retrouvé en simulation.

La Figure 64 présente la comparaison expérience/calcul de la source de ^{60}Co . De manière inattendue, le fond accidentel sur l'ensemble de la carte est plus important dans la mesure que dans la simulation et de légères bandes apparaissent également à proximité des axes (dans des intervalles temporels inférieur à 40 ns). La contribution globale plus importante est une conséquence logique des plus forts taux de comptages enregistrés dans le cas de la mesure que dans le cas de la simulation. Les légères contributions en bandes le long des axes sur les histogrammes de mesure du ^{60}Co sont dues aux contributions résiduelles neutroniques du bruit de fond (notamment les spallations) qui sont restés malgré la soustraction de l'histogramme issu de la mesure du bruit de fond. Comme nous l'avons vu, le bruit peut fortement varier en peu de temps, et plusieurs heures espacent les mesures du ^{60}Co et les mesures de bruit de fond dans les deux configurations (métallique et organique). Il sera donc important de soustraire cette contribution et d'évaluer les comptages liés à la source de ^{60}Co dans la région d'intérêt, pour vérifier que cette observation n'a pas d'impact sur l'évaluation du signal net dû aux fissions.

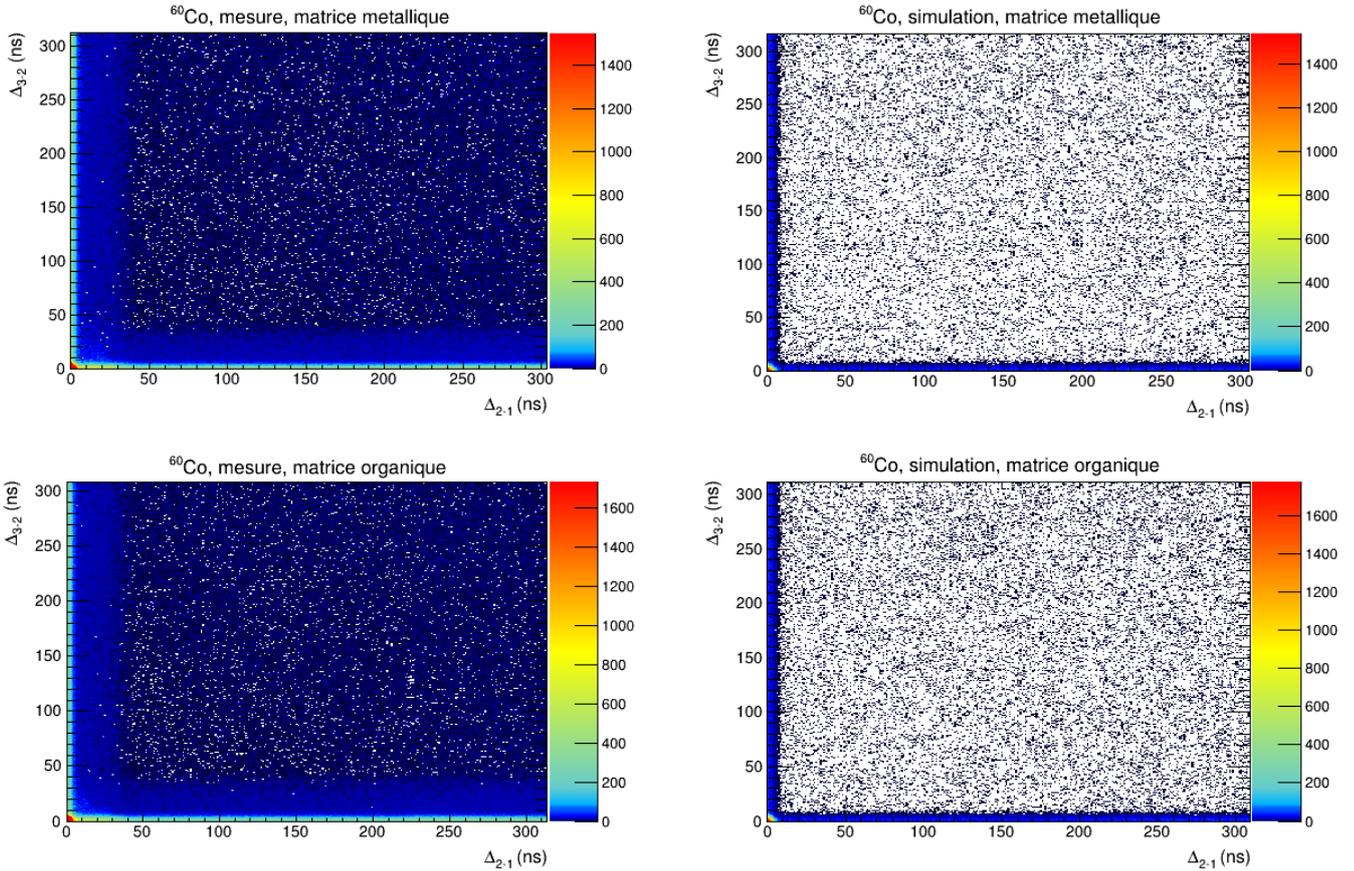


Figure 64. Histogrammes 2D obtenus en mesure (à gauche) et en simulation (à droite) pour la source de ^{60}Co au centre de la matrice métallique (en haut) et de la matrice organique (en bas). Les histogrammes de mesure sont nets de bruit de fond.

Les tableaux suivants recensent les comptages obtenus dans la ROI des histogrammes temporels 2D de différents bruits de fond mesurés (Tableau 40) en vue de leur soustraction puis ceux des sources dans les deux matrices (Tableau 41 et Tableau 42) pour comparer mesure et simulation.

Tableau 40. Comptages dans les régions d'intérêts des histogrammes 2D ($10 \text{ ns} \leq \Delta_{2-1} \leq 30 \text{ ns}$ et $10 \text{ ns} \leq \Delta_{3-2} \leq 30 \text{ ns}$) pour les mesures de 5 min de bruit de fond dans les deux matrices, aux différentes dates.

		Bruit de fond				
						
		09/03/21 (avec plomb)	25/03/21 (sans plomb)	24/02/21 (avec plomb)	29/03/21 (avec plomb)	29/03/21 (sans plomb)
Sans rejet de diaphonie		504 ± 22	339 ± 18	684 ± 26	242 ± 16	146 ± 12
$\Delta t \leq 30 \text{ ns}$		176 ± 13	132 ± 11	255 ± 16	146 ± 12	90 ± 9
$\Delta t \leq 60 \text{ ns}$		140 ± 12	117 ± 11	223 ± 15	141 ± 12	83 ± 9

Tableau 41. Comptages dans la ROI des histogrammes 2D ($10 \text{ ns} \leq \Delta_{2-1} \leq 30 \text{ ns}$ et $10 \text{ ns} \leq \Delta_{2-1} \leq 30 \text{ ns}$) pour les mesures et simulations de 5 min avec les sources de ^{252}Cf et d'AmBe, avec écran de plomb.

	^{252}Cf (n°3) – Soustraction du BDF du 24/02/21 (métallique) et du 09/03 (organique)				AmBe – Soustraction du BDF du 24/02/21 (métallique) et du 09/03 (organique)			
	Mesure (net BDF)	Simulation	Mesure (net BDF)	Simulation	Mesure (net BDF)	Simulation	Mesure (net BDF)	Simulation
Sans rejet de diaphonie	28 976 ± 173	32 254 ± 180	114 696 ± 341	256 243 ± 506	4 389 ± 73	4 016 ± 63	7 322 ± 93	8 288 ± 91
Rejet pour $\Delta t \leq 30 \text{ ns}$	15 799 ± 127	16 096 ± 127	66 567 ± 259	135 780 ± 368	1 036 ± 37	642 ± 41	1 720 ± 47	1 555 ± 39
Rejet pour $\Delta t \leq 60 \text{ ns}$	13 885 ± 119	14 140 ± 119	57 845 ± 241	117 042 ± 342	867 ± 34	545 ± 38	1 458 ± 44	1 345 ± 37

Tableau 42. Comptages dans la ROI des histogrammes 2D ($10 \text{ ns} \leq \Delta_{2-1} \leq 30 \text{ ns}$ et $10 \text{ ns} \leq \Delta_{2-1} \leq 30 \text{ ns}$) pour les mesures et simulations de 5 min avec sources de ^{60}Co et de ^{137}Cs , avec écran de plomb.

	^{60}Co – Soustraction du BDF du 24/02 (métallique) et du 09/03 (organique)				^{137}Cs – Soustraction du BDF du 29/03 (métallique) et du 09/03 (organique)			
	Mesure (net BDF)	Simulation	Mesure (net BDF)	Simulation	Mesure (net BDF)	Simulation	Mesure (net BDF)	Simulation
Sans rejet de diaphonie	1 053 ± 48	121 ± 11	559 ± 44	132 ± 11	98 ± 33	0 ± 0	81 ± 38	0 ± 0
Rejet pour $\Delta t \leq 30 \text{ ns}$	273 ± 25	77 ± 9	210 ± 27	74 ± 9	-14 ± 18	0 ± 0	46 ± 24	0 ± 0
Rejet pour $\Delta t \leq 60 \text{ ns}$	228 ± 23	69 ± 8	186 ± 25	62 ± 8	4 ± 17	0 ± 0	38 ± 22	0 ± 0

Le Tableau 40 nous indique que malgré les grandes fluctuations possibles dans le bruit de fond pour les raisons évoquées plus haut (variations de la pression atmosphérique jouant sur le bruit de fond cosmique), les régions d'intérêt ne présentent que quelques centaines de coup dans la ROI. Ce faible niveau de bruit de fond dans la ROI est dû au fait que la plupart des coups se situent au niveau de l'origine des histogrammes temporels à deux dimensions, voir Figure 58.

Dans le Tableau 41, l'accord entre l'expérience et le calcul est globalement satisfaisant pour la matrice organique (^{252}Cf ou AmBe) et pour l'AmBe au centre de la matrice métallique, mais on observe une surestimation de l'ordre d'un facteur 2 des comptages simulés pour la source de ^{252}Cf au centre de la matrice métallique, comme on l'avait remarqué pour le comptage des triplets (Tableau 35, méthode des registres à décalage). Les sources de rayonnements gamma présentées dans le Tableau 42 présentent un nombre anormal de coups dans la région d'intérêt, dus aux artefacts observés lors des mesures (cf. Figure 64), par rapport à ce qui est attendu par la simulation. Le rejet de la diaphonie permet de supprimer une grande partie de ces contributions parasites, mais il reste environ 3 fois supérieur à celui simulé pour la source de ^{60}Co (pour le ^{137}Cs , le bruit simulé dans la ROI est nul).

3.3 EFFETS DE MATRICE ET DE LOCALISATION

3.3.1 Evaluation expérimentale

Dans un fût de déchets radioactifs réel, la contamination (ici le plutonium) peut se trouver en tout point. Par exemple, il peut s'agir de dépôts sur des déchets technologiques en périphérie du fût ou bien en son cœur. Lorsqu'un point source est décentré par rapport à l'ensemble du système de mesure, les directions d'émissions des particules ne sont plus équivalentes car chacune d'elle voit des épaisseurs différentes de matrice de déchets, ou bien des variations dans les distances par rapport aux détecteurs. En situation réelle, il est d'usage de mettre le colis sur un

plateau tournant pour « homogénéiser » la répartition apparente de la contamination et réduire ainsi les incertitudes de mesure liées à sa localisation [Porcher2013].

Cependant notre dispositif maquette n'est pas équipé de plateau tournant et la géométrie de mesure est assez dissymétrique selon la dimension axiale, le fût étant comme les détecteurs posé sur le sol (plus exactement sur une palette) et ces derniers, de hauteur 100 cm, dépassant largement la hauteur de la matrice de déchets, 60 cm. Au cours des essais menés au Laboratoire de Mesures Nucléaires, afin d'évaluer les effets liés à la localisation du contaminant, des mesures ont été réalisées avec des sources de ^{252}Cf ponctuelles placées en différentes positions dans le fût maquette. L'instrumentation de positionnement des sources dispose de 4 canaux, permettant 4 positions radiales ($r = 0 \text{ cm}$, $r = 11.5 \text{ cm}$, $r = 15 \text{ cm}$ et $r = 20 \text{ cm}$) ainsi que la totalité des positions axiales entre $h = 0 \text{ cm}$ et $h = 60 \text{ cm}$. Les positions axiales et radiales retenues pour les essais sont illustrées en Figure 65.

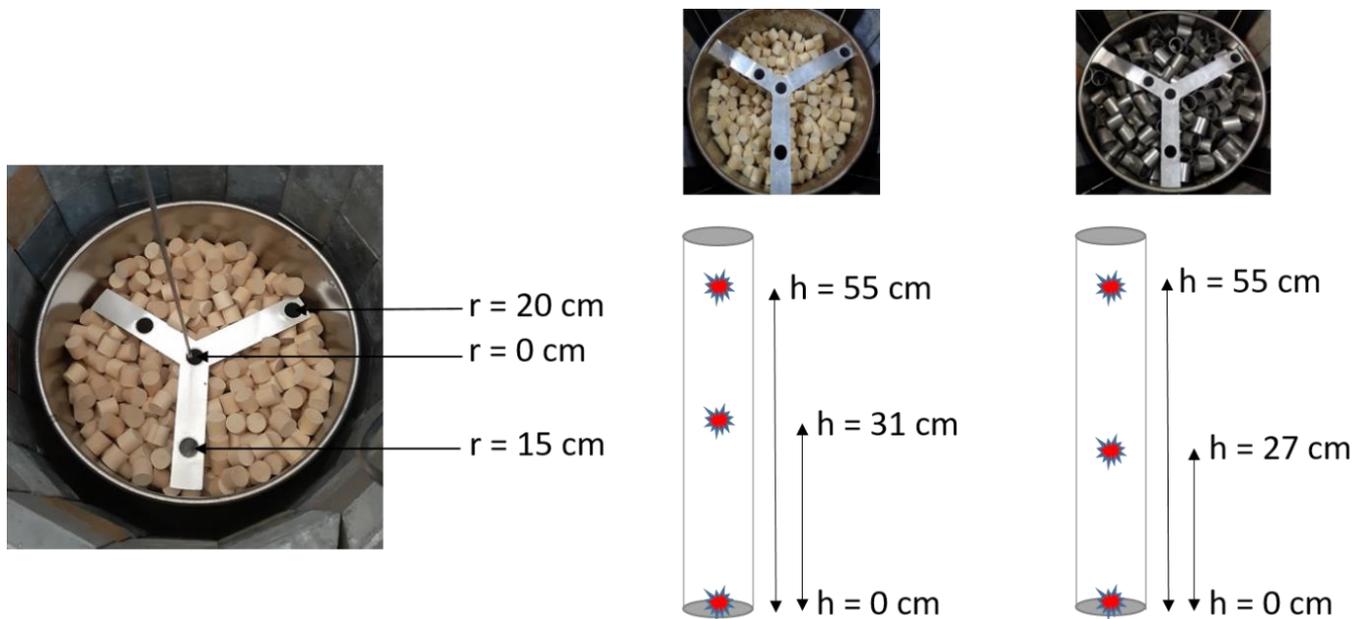


Figure 65. Positions radiales et axiales du ^{252}Cf pour estimer les effets de localisation dans les deux matrices

Neuf positions différentes sont donc testées dans le cas des deux matrices ($r = 0 \text{ cm} - h = 31 \text{ cm}$ ou $h = 27 \text{ cm}$ pour les matrices organique et métallique, respectivement). Les résultats présentés ci-après pour la méthode du registre à décalage sont les taux de comptage des triplets et ceux de la méthode graphique à deux dimensions sont les comptages bruts dans la région d'intérêt des histogrammes définie au chapitre 2. Un rejet de diaphonie est appliqué sur des intervalles de 60 ns. Les essais sont réalisés avec la source la plus active de ^{252}Cf ($n^{\circ}3$, qui représente 186 g de ^{240}Pu équivalent) pour limiter les durées de mesure, soit 5 min pour chaque position.

Les résultats pour la matrice métallique sont donnés dans les Tableau 43 et Tableau 44, respectivement pour les taux de comptage des triplets et des événements bruts dans les histogrammes 2D par unité de masse de ^{240}Pu équivalent (que l'on appelle couramment coefficient de sensibilité ou d'étalonnage, que l'on notera CE plus bas).

Tableau 43. Coefficients de sensibilité pour la mesure des triplets (méthode des registres à décalage) avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice métallique.

	Nombre de triplets (^{252}Cf) $(\text{s}^{-1} \cdot \text{g}_{\text{eq}240\text{Pu}}^{-1})$	$r_0 = 0 \text{ cm}$	$r_1 = 15 \text{ cm}$	$r_2 = 20 \text{ cm}$
		$h_2 = 55 \text{ cm}$	$1,50 \pm 0,01$	$1,56 \pm 0,01$
$h_1 = 27 \text{ cm}$	$1,18 \pm 0,01$	$1,21 \pm 0,01$	$1,22 \pm 0,01$	
$h_0 = 0 \text{ cm}$	$0,448 \pm 0,009$	$0,461 \pm 0,008$	$0,456 \pm 0,009$	

Tableau 44. Coefficients de sensibilité pour la mesure dans la ROI des histogrammes 2D avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice métallique.

Comptage ROI Histogramme 2D (^{252}Cf) ($\text{s}^{-1} \cdot \text{g}_{\text{eq}240\text{Pu}}^{-1}$)	$r_0 = 0 \text{ cm}$	$r_1 = 15 \text{ cm}$	$r_2 = 20 \text{ cm}$
	$h_2 = 55 \text{ cm}$	$1,32 \pm 0,01$	$1,49 \pm 0,01$
$h_1 = 27 \text{ cm}$	$1,07 \pm 0,01$	$1,21 \pm 0,01$	$1,26 \pm 0,01$
$h_0 = 0 \text{ cm}$	$0,444 \pm 0,003$	$0,488 \pm 0,003$	$0,498 \pm 0,003$

La Figure 66 présente les résultats des deux tableaux précédents de manière graphique.

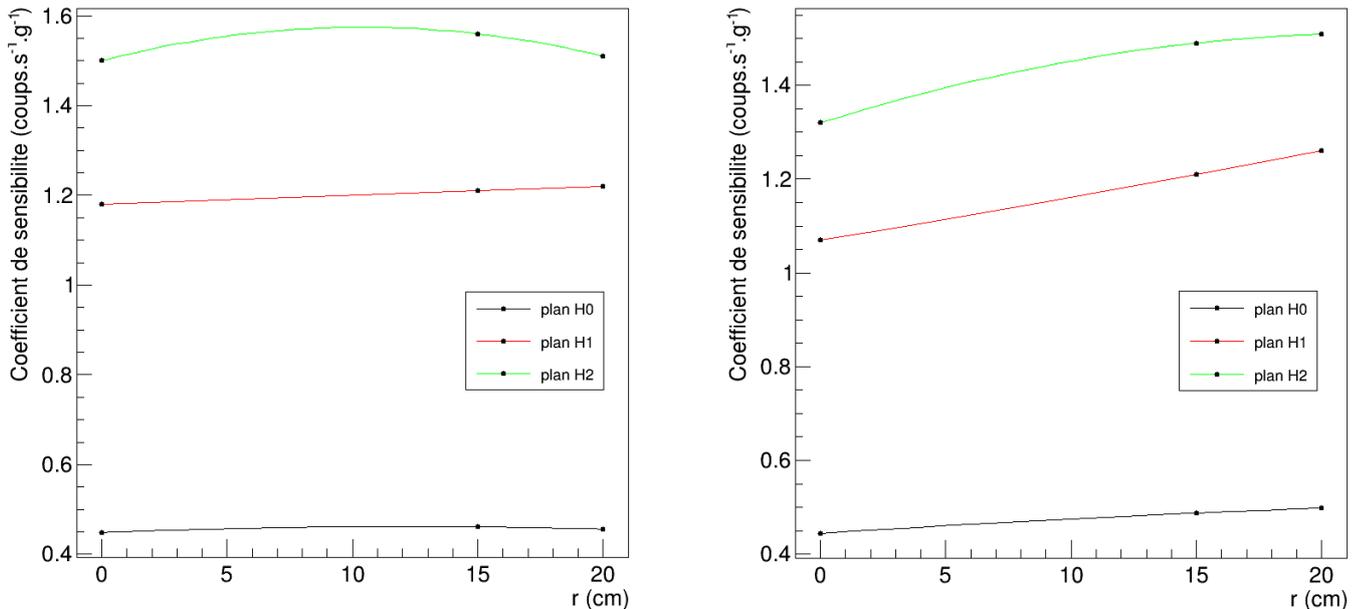


Figure 66. Coefficients de sensibilité pour la mesure des triplets (à gauche) et pour la mesure des ROI (à droite) avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice métallique (et ajustements polynomiaux d'ordre 2).

Une observation importante est que la variation selon la position radiale r influence peu la mesure des triplets ou des comptages bruts dans l'histogramme 2D. En revanche, la hauteur influe davantage en raison de la dissymétrie axiale de la géométrie de mesure évoquée plus haut, avec des valeurs de triplets et de comptages qui vont du simple au triple entre la position basse et la position haute de la source dans le fût. En effet, comme les détecteurs dépassent largement au-dessus de la surface de remplissage des matrices dans le fût maquette, l'efficacité en position haute est beaucoup plus grande qu'en position basse (très peu d'atténuation des rayonnements, notamment gamma, dans la matrice métallique).

Il est possible d'évaluer l'incertitude relative liée à la méconnaissance de la localisation du contaminant en considérant un cas de référence (source homogène dans le fût) et en considérant une distribution équiprobable des positions des 9 configurations, de la manière suivante [Evrard2019] :

$$IR_{loc} = \frac{CE_{max} - CE_{min}}{\sqrt{12} CE_{ref}} \quad (38)$$

où IR_{loc} est l'incertitude relative liée à la localisation dans le fût. CE_{max} , CE_{min} , et CE_{ref} sont respectivement les coefficients d'étalonnage maximum, minimum et de référence (c'est-à-dire, ici, soit les comptages des triplets, soit les comptages bruts dans les régions d'intérêt). En pratique, pour des déchets technologiques par nature hétérogènes, il est impossible d'avoir une configuration avec une source homogène dans un fût de déchets. Néanmoins, il est d'usage de considérer cette distribution idéale comme la référence. Une première approximation consiste à considérer la moyenne des coefficients d'étalonnage dans les 9 positions comme référence, car elle est souvent du même ordre de grandeur que le coefficient d'étalonnage homogène [Evrard2019]. Il est toutefois possible d'évaluer plus précisément quelle serait la réponse homogène à partir de ces 9 mesures et d'une interpolation mathématique décrite dans [AFNOR-60315] et [Evrard2019], qui se décompose en deux étapes :

- l'intégration sur chaque plan radial des réponses ponctuelles, pour obtenir les réponses homogènes surfaciques de chaque plan utilisé pour les mesures (dans notre cas, il s'agit des plans à $h = 0$ cm, $h = 27$ cm ou 31 cm, et $h = 55$ cm) ;
- l'intégration des réponses homogènes des plans radiaux sur la dimension axiale de la matrice (de $h = 0$ cm à $h = 60$ cm dans notre cas), afin d'obtenir la réponse homogène globale dans l'ensemble de la matrice.

Il convient dans un premier temps de réécrire la matrice des résultats obtenus dans le Tableau 43, de la manière suivante, par exemple pour les triplets (données du Tableau 44) :

$$Mat_{h,r} (\text{métallique, triplets}) = \begin{pmatrix} 1,50 & 1,56 & 1,51 \\ 1,18 & 1,21 & 1,22 \\ 0,448 & 0,461 & 0,456 \end{pmatrix} \quad (39)$$

On notera r_0 , r_1 et r_2 , les 3 positions radiales employées, à savoir respectivement 0 cm, 15 cm et 20 cm. De manière équivalente, on notera h_0 , h_1 et h_2 les 3 positions axiales employées, c'est-à-dire 0 cm, 27 cm et 55 cm. En projection sur le premier plan radial h_0 (ligne du bas de la matrice $Mat_{h,r}$ dans l'équation (39)), on cherche à résoudre le système d'équations suivants :

$$\begin{aligned} A(r_0)^2 + B(r_0) + C &= Mat_{0,0} (\text{métallique, triplets}) \\ A(r_1)^2 + B(r_1) + C &= Mat_{0,1} (\text{métallique, triplets}) \\ A(r_2)^2 + B(r_2) + C &= Mat_{0,2} (\text{métallique, triplets}) \end{aligned}$$

La réponse homogène surfacique sur le plan h_0 est ensuite donnée par :

$$S_{h_0} = \frac{1}{\pi R_t^2} \int_0^{R_t} (Ar^2 + Br + C) 2\pi r dr \quad (40)$$

où R_t est l'étendue de toutes les positions radiales possibles dans la matrice (ici, $R_t = 23$ cm, et correspond au rayon du fût de déchet). Pour le plan h_0 , la réponse homogène surfacique vaut donc :

$$S_{h_0} = 0,460 s^{-1} \cdot g_{eq}^{-1}{}_{240Pu}$$

De manière équivalente, le système d'équations est posé pour les plans h_1 ($Mat_{1,0}$, $Mat_{1,1}$ et $Mat_{2,1}$) et h_2 ($Mat_{2,0}$, $Mat_{2,1}$ et $Mat_{2,2}$), et permet de déterminer les coefficients A, B et C, qui à leur tour permettent de calculer les intégrales des réponses homogènes surfaciques S_{h_1} et S_{h_2} pour ces deux plans, à l'aide de l'équation (40) :

$$\begin{aligned} S_{h_1} &= 1,216 s^{-1} \cdot g_{eq}^{-1}{}_{240Pu} \\ S_{h_2} &= 1,536 s^{-1} \cdot g_{eq}^{-1}{}_{240Pu} \end{aligned}$$

Enfin, un dernier système d'équations est posé, mais cette fois-ci selon la dimension axiale, de la manière suivante :

$$\begin{aligned} A(h_0)^2 + B(h_0) + C &= S_{h_0} \\ A(h_1)^2 + B(h_1) + C &= S_{h_1} \\ A(h_2)^2 + B(h_2) + C &= S_{h_2} \end{aligned}$$

Et la résolution de ce système permet de calculer la réponse homogène dans l'ensemble de la matrice grâce à l'intégrale suivante sur la dimension axiale :

$$CE_{ref} = \frac{1}{H_t} \int_0^{H_t} (Ah^2 + Bh + C) dh \quad (41)$$

Où H_t est l'étendue totale des positions axiales permises dans la matrice, à savoir ici 60 cm. Le calcul de cette intégrale sera utilisé comme coefficient d'étalonnage de référence et donne le résultat suivant :

$$CE_{ref} (\text{métallique, triplets}) = 1,20 \pm 0,07 s^{-1} \cdot g_{240Pu}^{-1}{}_{eq}$$

Cette méthodologie est appliquée, de manière similaire, pour les comptages dans les régions d'intérêt des histogrammes 2D (données du Tableau 44) et donne le coefficient d'étalonnage de référence suivant :

$$CE_{ref} (\text{métallique, comptage ROI}) = 1,18 \pm 0,07 s^{-1} \cdot g_{240Pu}^{-1}{}_{eq}$$

Enfin, les incertitudes relatives sont données par l'équation (38), et valent dans le cas de la matrice métallique :

$$IR_{loc}(m\u00e9tallique, triplets) = \frac{1,56 - 0,448}{\sqrt{12} \cdot 1,20} = 27 \%$$

$$IR_{loc}(m\u00e9tallique, comptage ROI) = \frac{1,51 - 0,444}{\sqrt{12} \cdot 1,18} = 26 \%$$

Les Tableau 45 et Tableau 46 pr\u00e9sentent les r\u00e9sultats obtenus en ce qui concerne la matrice organique :

Tableau 45. Coefficients de sensibilit\u00e9 pour la mesure des triplets (registres \u00e0 d\u00e9calage) avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice organique.

	Nombre de triplets (^{252}Cf) ($\text{s}^{-1} \cdot \text{g}_{240\text{Pu\u00e9q}}^{-1}$)	$r_0 = 0 \text{ cm}$	$r_1 = 15 \text{ cm}$	$r_2 = 20 \text{ cm}$
		$h_2 = 55 \text{ cm}$	$0,667 \pm 0,007$	$0,674 \pm 0,007$
$h_1 = 31 \text{ cm}$	$0,397 \pm 0,006$	$0,435 \pm 0,006$	$0,575 \pm 0,006$	
$h_0 = 0 \text{ cm}$	$0,139 \pm 0,004$	$0,153 \pm 0,004$	$0,190 \pm 0,005$	

Tableau 46. Coefficients de sensibilit\u00e9 pour la mesure dans la ROI des histogrammes 2D avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice organique.

	Comptage ROI Histogramme 2D (^{252}Cf) ($\text{s}^{-1} \cdot \text{g}_{240\text{Pu\u00e9q}}^{-1}$)	$r_0 = 0 \text{ cm}$	$r_1 = 15 \text{ cm}$	$r_2 = 20 \text{ cm}$
		$h_2 = 55 \text{ cm}$	$0,550 \pm 0,002$	$0,620 \pm 0,002$
$h_1 = 31 \text{ cm}$	$0,325 \pm 0,002$	$0,384 \pm 0,002$	$0,470 \pm 0,002$	
$h_0 = 0 \text{ cm}$	$0,115 \pm 0,001$	$0,136 \pm 0,001$	$0,160 \pm 0,001$	

La Figure 67 pr\u00e9sente les r\u00e9sultats des deux derniers tableaux de mani\u00e8re graphique :

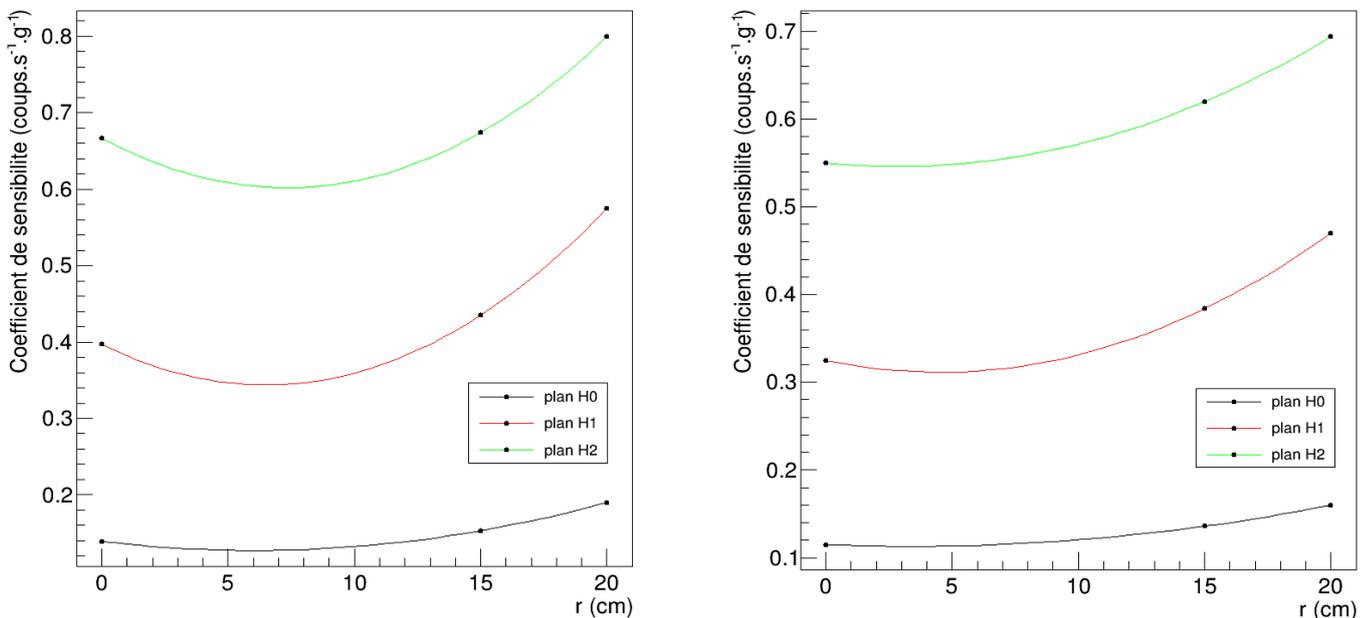


Figure 67. Coefficients de sensibilit\u00e9 pour la mesure des triplets (\u00e0 gauche) et pour la mesure des ROI (\u00e0 droite) avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice organique (et ajustements polynomiaux d'ordre 2).

De mani\u00e8re similaire \u00e0 la matrice m\u00e9tallique, la position en hauteur de la source a beaucoup plus d'impact que sa position radiale, avec plus d'un facteur 4 de diff\u00e9rence entre la hauteur minimale (0 cm) et maximale (55 cm), toujours en raison de la g\u00e9om\u00e9trie dissym\u00e9trique du syst\u00e8me de mesure. On note cependant un effet radial plus marqu\u00e9 de la matrice bois par rapport \u00e0 la matrice m\u00e9tallique \u00e0 mi-hauteur du f\u00fbt, en raison d'une att\u00e9nuation plus grande des neutrons prompts de fission, plus pr\u00e9cis\u00e9ment de leur mod\u00e9ration les rendant pour partie non d\u00e9tectables. Les Tableau 30 et Tableau 31 sur les efficacit\u00e9s de d\u00e9tection des neutrons et rayonnements gamma

prompts de fission dans les deux matrices, respectivement, montrent ainsi une diminution d'efficacité de plus d'un facteur 2 pour les neutrons dans la matrice bois par rapport à la matrice fer (avec la couronne de plomb), alors que l'écart est bien plus faible pour les rayonnements gamma. On rappelle que les triplets sélectionnés à partir du registre à décalage dans une fenêtre de coïncidence comprise entre 10 ns et 30 ns, ainsi que la sélection temporelle sur les histogrammes 2D, favorisent la sélection des coïncidences de type γnn .

A partir des équations (40) et (41), les coefficients d'étalonnage des cas homogènes de références, pour les triplets et pour les comptages dans les ROI des histogrammes 2D, sont calculés :

$$CE_{ref}(\text{organique, triplets}) = 0,471 \pm 0,014 \text{ s}^{-1} \cdot g_{eq240Pu}^{-1}$$

$$CE_{ref}(\text{organique, comptage ROI}) = 0,403 \pm 0,011 \text{ s}^{-1} \cdot g_{eq240Pu}^{-1}$$

Les incertitudes relatives de localisation sont estimées à nouveau grâce à l'équation (38) :

$$IR_{loc}(\text{organique, triplets}) = \frac{0,800 - 0,139}{\sqrt{12} \cdot 0,471} = 41 \%$$

$$IR_{loc}(\text{organique, comptage ROI}) = \frac{0,694 - 0,115}{\sqrt{12} \cdot 0,403} = 41 \%$$

L'incertitude de localisation dans la matrice bois est donc plus grande qu'avec la matrice métallique (elle était de l'ordre de 26%), mais il est important de rappeler qu'une partie de l'incertitude est due à la dissymétrie du système de mesure. Un système avec un fût centré par rapport aux détecteurs, voire même avec des détecteurs en dessous et au-dessus du colis, permettrait aisément de réduire cette incertitude. Une première approche en ce sens est présentée ci-après.

Il est par ailleurs intéressant de comparer les coefficients d'étalonnage pour une répartition homogène (CE_{ref}) des matrices métallique et organique : $1,20 \text{ s}^{-1} \cdot g_{240Pu_{eq}}^{-1}$ vs. $0,471 \text{ s}^{-1} \cdot g_{240Pu_{eq}}^{-1}$ pour les triplets ou $1,18 \text{ s}^{-1} \cdot g_{240Pu_{eq}}^{-1}$ vs. $0,403 \text{ s}^{-1} \cdot g_{240Pu_{eq}}^{-1}$ pour les comptages dans la ROI. De telles différences sont gérables en pratique, en utilisant différents types de matrices étalon (métallique, organique, mixte) selon la provenance des déchets dans l'installation. On peut aussi noter que les densités de matrices considérées (0,3 pour celle de bois, 0,5 pour celle de fer) sont relativement pénalisantes par rapport aux déchets réels (typiquement 0,1 à 0,3 [Orano]). En cas de méconnaissance du type de déchets et de la densité apparente (hauteur de remplissage inconnue), les propriétés d'atténuation neutroniques et gamma peuvent aussi être caractérisées, de façon classique, par des mesures de transmission neutronique et gamma.

On note par ailleurs que l'écart entre matrice métallique et organique est un peu plus grand sur les comptages dans la ROI car cette région est surtout peuplée de coïncidences de type γnn et l'efficacité de détection des neutrons est davantage réduite par la matrice organique (voir Tableau 30). Pour les triplets, on compte des coïncidences réelles de type $\gamma\gamma\gamma$ et $\gamma\gamma n$ en plus des coïncidences de type γnn et il y a donc un effet de compensation entre les impacts respectifs des matrices métallique et organique sur les rayonnements gamma ou neutroniques.

3.4.1 Evaluation des effets de localisation par simulation numérique

Comme mentionné plus haut, il est intéressant de vérifier par la simulation si un système plus symétrique, par exemple avec un fût centré par rapport aux détecteurs comme représenté Figure 68, permettrait d'obtenir des coefficients d'étalonnage moins sensibles à la position de la source dans le fût et donc des incertitudes relatives de localisation plus faibles. Pour cela, on simule avec MCNPX-PoliMi les mêmes mesures, de 5 min pour la matrice métallique et de 10 minutes pour la matrice organique, en 9 positions de la source de ^{252}Cf qui correspond à 186 g de ^{240}Pu équivalent.

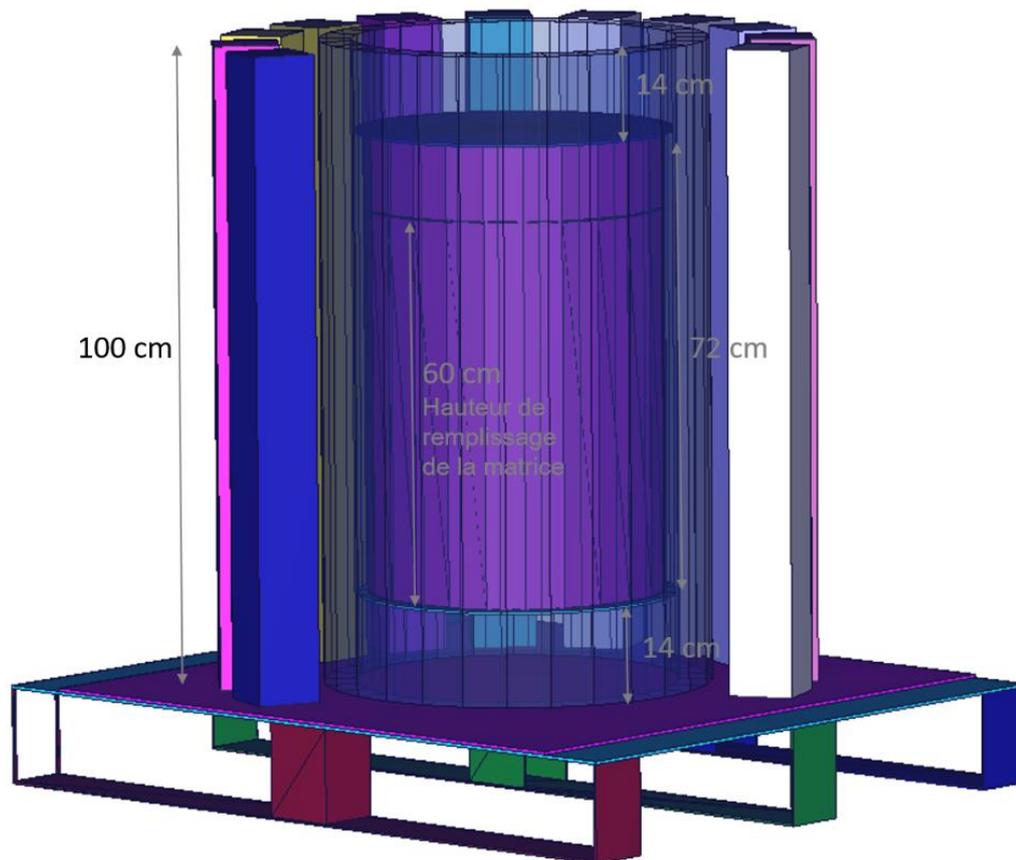


Figure 68. Modélisation MCNPX-PoliMi du système de détection avec fût de déchet centré par rapport aux scintillateurs plastiques (scintillateurs frontaux masqués et ceinture de plomb transparente pour voir le fût).

La modélisation montre bien ici que le fait de placer le fût de déchets au centre ne permet pas de centrer la matrice par rapport aux détecteurs car le taux de remplissage du fût n'est pas de 100%. En effet, la hauteur de remplissage n'est que de 60 cm, qui correspond à celle de la matrice et des canaux d'instrumentation, alors que le fût présente une hauteur de 72 cm. Les coefficients d'étalonnage pour la matrice métallique, calculés à partir des triplets du registre à décalage ainsi que des comptages dans les ROI des histogrammes temporels à deux dimensions, sont donnés respectivement dans les Tableau 47 et Tableau 48.

Tableau 47. Coefficients de sensibilité pour la mesure des triplets (registres à décalage) simulés avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice métallique.

	Nombre de triplets (^{252}Cf) $(\text{s}^{-1} \cdot \text{g}_{\text{eq}240\text{Pu}}^{-1})$	$r_0 = 0 \text{ cm}$	$r_1 = 15 \text{ cm}$	$r_2 = 20 \text{ cm}$
		$h_2 = 55 \text{ cm}$	$2,21 \pm 0,01$	$2,27 \pm 0,01$
$h_1 = 27 \text{ cm}$	$2,61 \pm 0,02$	$2,65 \pm 0,02$	$2,56 \pm 0,02$	
$h_0 = 0 \text{ cm}$	$1,33 \pm 0,01$	$1,40 \pm 0,01$	$1,36 \pm 0,01$	

Tableau 48. Coefficients de sensibilité simulés pour la mesure dans la ROI des histogrammes 2D avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice métallique.

	Comptage ROI Histogramme 2D (^{252}Cf) $(\text{s}^{-1} \cdot \text{g}_{\text{eq}240\text{Pu}}^{-1})$	$r_0 = 0 \text{ cm}$	$r_1 = 15 \text{ cm}$	$r_2 = 20 \text{ cm}$
		$h_2 = 55 \text{ cm}$	$2,18 \pm 0,01$	$2,47 \pm 0,01$
$h_1 = 27 \text{ cm}$	$2,65 \pm 0,02$	$2,91 \pm 0,02$	$3,09 \pm 0,02$	
$h_0 = 0 \text{ cm}$	$1,48 \pm 0,01$	$1,62 \pm 0,01$	$1,77 \pm 0,01$	

La Figure 69 ci-dessous présente graphiquement les résultats de ces deux derniers tableaux.

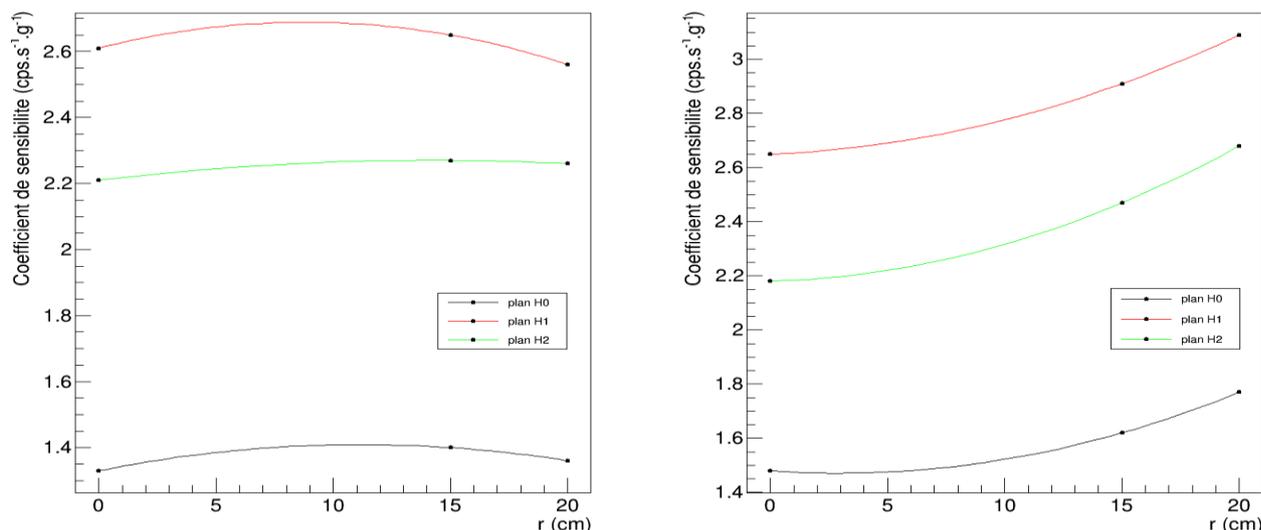


Figure 69. Coefficients de sensibilité pour la simulation des triplets (à gauche) et pour la simulation des ROI (à droite) avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice métallique, avec fût centré (et ajustements polynomiaux d'ordre 2).

Les valeurs maximales sont observées logiquement pour la position axiale centrale ($h = 27\text{cm}$), la plus centrée par rapport aux détecteurs et présentant le plus grand angle solide de détection, et pour les sources excentrées ($r = 20\text{ cm}$). L'application des équations (39), (40) et (41) permet d'établir les 3 coefficients homogènes surfaciques ainsi que le coefficient homogène global pour cette matrice, avec les triplets et les comptages dans les histogrammes :

$$\begin{aligned}
 S_{h0}(\text{métallique, triplets}) &= 1,40 \text{ s}^{-1} \cdot g_{eq240Pu}^{-1} \\
 S_{h1}(\text{métallique, triplets}) &= 2,62 \text{ s}^{-1} \cdot g_{eq240Pu}^{-1} \\
 S_{h2}(\text{métallique, triplets}) &= 2,26 \text{ s}^{-1} \cdot g_{eq240Pu}^{-1}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 S_{h0}(\text{métallique, comptage ROI}) &= 1,64 \text{ s}^{-1} \cdot g_{eq240Pu}^{-1} \\
 S_{h1}(\text{métallique, comptage ROI}) &= 2,93 \text{ s}^{-1} \cdot g_{eq240Pu}^{-1} \\
 S_{h2}(\text{métallique, comptage ROI}) &= 2,50 \text{ s}^{-1} \cdot g_{eq240Pu}^{-1}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 CE_{ref}(\text{métallique, triplets}) &= 2,41 \pm 0,07 \text{ s}^{-1} \cdot g_{eq240Pu}^{-1} \\
 CE_{ref}(\text{métallique, comptage ROI}) &= 2,70 \pm 0,08 \text{ s}^{-1} \cdot g_{eq240Pu}^{-1}
 \end{aligned}$$

Les calculs d'incertitudes relatives, selon l'équation (38), donnent alors :

$$IR_{loc}(\text{métallique, triplets}) = \frac{2,65 - 1,33}{\sqrt{12} \cdot 2,41} = 16\%$$

$$IR_{loc}(\text{métallique, comptage ROI}) = \frac{3,09 - 1,48}{\sqrt{12} \cdot 2,70} = 17\%$$

Ces incertitudes sont plus faibles que celles obtenues en mesure avec le système dissymétrique (26%).

Pour la matrice organique, Les coefficients d'étalonnage sont donnés respectivement dans les Tableau 49 et Tableau 50.

Tableau 49. Coefficients de sensibilité simulés pour la mesure des triplets (registres à décalage) simulés avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice organique.

	Nombre de triplets (^{252}Cf) ($\text{s}^{-1} \cdot g_{eq240Pu}^{-1}$)	$r_0 = 0\text{ cm}$	$r_1 = 15\text{ cm}$	$r_2 = 20\text{ cm}$
	$h_2 = 55\text{ cm}$		$0,442 \pm 0,011$	$0,512 \pm 0,011$
$h_1 = 31\text{ cm}$		$0,341 \pm 0,009$	$0,464 \pm 0,010$	$0,528 \pm 0,011$
$h_0 = 0\text{ cm}$		$0,341 \pm 0,010$	$0,392 \pm 0,010$	$0,432 \pm 0,010$

Tableau 50. Coefficients de sensibilité pour la mesure dans la ROI des histogrammes 2D simulés avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice organique.

Comptage ROI Histogramme 2D (^{252}Cf) ($\text{s}^{-1} \cdot \text{g}_{\text{eq}240\text{Pu}}^{-1}$)	$r_0 = 0 \text{ cm}$	$r_1 = 15 \text{ cm}$	$r_2 = 20 \text{ cm}$
	$h_2 = 55 \text{ cm}$	$0,380 \pm 0,06$	$0,470 \pm 0,06$
$h_1 = 31 \text{ cm}$	$0,311 \pm 0,05$	$0,425 \pm 0,06$	$0,491 \pm 0,07$
$h_0 = 0 \text{ cm}$	$0,332 \pm 0,05$	$0,407 \pm 0,06$	$0,467 \pm 0,06$

La Figure 70 ci-dessous présente graphiquement les résultats de ces deux derniers tableaux.

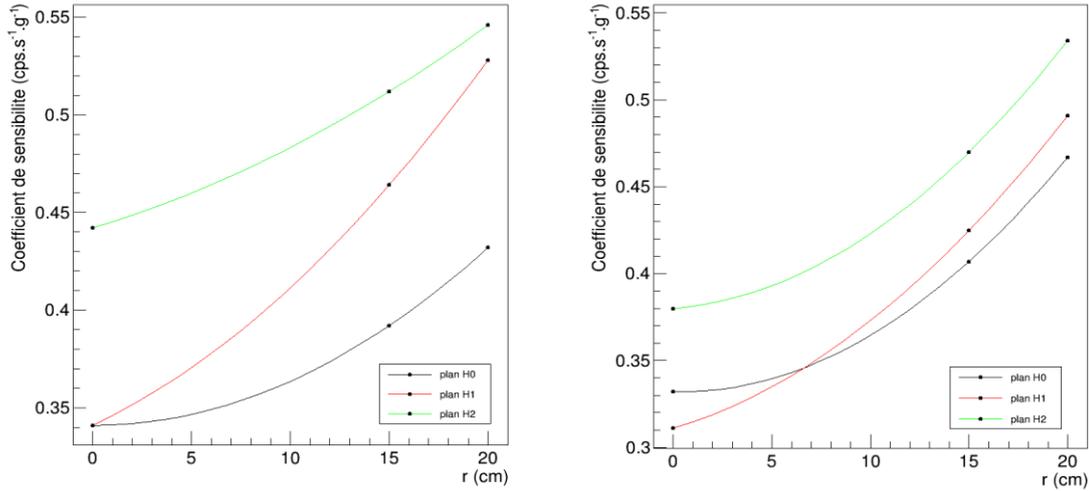


Figure 70. Coefficients de sensibilité pour la simulation des triplets (à gauche) et pour la simulation des ROI (à droite) avec la source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice organique, (et ajustements polynomiaux d'ordre 2).

Les coefficients homogènes surfaciques sont :

$$S_{h_0}(\text{organique, triplets}) = 0,388 \text{ s}^{-1} \cdot \text{g}_{\text{eq}240\text{Pu}}^{-1}$$

$$S_{h_1}(\text{organique, triplets}) = 0,461 \text{ s}^{-1} \cdot \text{g}_{\text{eq}240\text{Pu}}^{-1}$$

$$S_{h_2}(\text{organique, triplets}) = 0,513 \text{ s}^{-1} \cdot \text{g}_{\text{eq}240\text{Pu}}^{-1}$$

$$S_{h_0}(\text{organique, comptage ROI}) = 0,398 \cdot \text{g}_{\text{eq}240\text{Pu}}^{-1}$$

$$S_{h_1}(\text{organique, comptage ROI}) = 0,435 \text{ s}^{-1} \cdot \text{g}_{\text{eq}240\text{Pu}}^{-1}$$

$$S_{h_2}(\text{organique, comptage ROI}) = 0,463 \text{ s}^{-1} \cdot \text{g}_{\text{eq}240\text{Pu}}^{-1}$$

Les coefficients homogènes dans l'ensemble du fût sont donc donnés par :

$$CE_{ref}(\text{organique triplets}) = 0,458 \pm 0,161 \text{ s}^{-1} \cdot \text{g}_{\text{eq}240\text{Pu}}^{-1}$$

$$CE_{ref}(\text{organique, comptage ROI}) = 0,433 \pm 0,135 \text{ s}^{-1} \cdot \text{g}_{\text{eq}240\text{Pu}}^{-1}$$

Les calculs d'incertitude relative selon l'équation (38) donnent alors :

$$IR_{loc}(\text{organique, triplets}) = \frac{0,546 - 0,341}{\sqrt{12} \cdot 0,458} = 13 \%$$

$$IR_{loc}(\text{organique, comptage ROI}) = \frac{0,534 - 0,311}{\sqrt{12} \cdot 0,433} = 15 \%$$

Ces incertitudes sont à nouveau plus faibles que celles mesurées avec le système dissymétrique (41%). Par ailleurs, pour les mesures, les coefficients d'étalonnage pour une répartition homogène dans les matrices métallique et organique étaient respectivement de $1,20 \text{ s}^{-1} \cdot \text{g}_{240\text{Pu}}^{-1}$ et $0,471 \text{ s}^{-1} \cdot \text{g}_{240\text{Pu}}^{-1}$ pour les triplets, et de $1,18 \text{ s}^{-1} \cdot \text{g}_{240\text{Pu}}^{-1}$ et $0,403 \text{ s}^{-1} \cdot \text{g}_{240\text{Pu}}^{-1}$ pour les comptages dans la ROI. Ici ils sont de $2,41 \text{ s}^{-1} \cdot \text{g}_{240\text{Pu}}^{-1}$ vs. $0,458 \text{ s}^{-1} \cdot \text{g}_{240\text{Pu}}^{-1}$ pour les triplets, et de $2,70 \text{ s}^{-1} \cdot \text{g}_{240\text{Pu}}^{-1}$ et $0,433 \text{ s}^{-1} \cdot \text{g}_{240\text{Pu}}^{-1}$ pour les comptages dans la ROI.

On retrouve la surestimation par la simulation déjà observée pour les mesures de la source de ^{252}Cf au centre de la matrice métallique, au niveau des comptages des triplets (cf. Tableau 35) ou dans la ROI (Tableau 41), tandis qu'avec la matrice organique, expérience et simulation étaient en bon accord comme ici.

L'écart observé sur les coefficients d'étalonnage simulés des deux matrices, d'un facteur 5 à 6 pour les triplets ou la ROI, peut à nouveau s'expliquer par le type des coïncidences utiles, majoritairement $\gamma n n$, et le caractère très modérateur de la matrice bois qui rend une partie significative des neutrons de fission non détectables (voir Tableau 30). Comme déjà signalé, il devra être géré en pratique par la définition de différentes matrices étalon (métallique, organique, mixte) représentatives des différents déchets produits dans l'installation (par exemple au niveau des différentes étapes d'une usine de fabrication de combustible). En cas d'incertitude trop importante sur la nature des déchets et leur densité apparente (hauteur de remplissage mal connue), les propriétés d'atténuation neutroniques et gamma pourront être caractérisées par des mesures de transmission.

3.5 OPTIMISATION DE L'ANALYSE DES DONNEES

L'objectif final de cette thèse est de démontrer la possibilité de quantifier la masse équivalente en ^{240}Pu dans un fût de déchets technologiques avec un nouveau système de détection et des traitements innovants de données. Pour ce faire, les acquisitions et traitements de données doivent permettre d'obtenir un signal net (triplets du registre à décalage ou comptage dans la ROI des histogrammes 2D) proportionnel à la masse équivalente de ^{240}Pu , de la manière la plus indépendante possible de paramètres tels que le taux de comptage, les phénomènes associés de temps mort dans l'électronique, le taux de coïncidences accidentelles à fort taux de comptage, la masse et la géométrie du plutonium (effets de multiplication dus aux fissions induites par les neutrons de fissions spontanées ou réactions (α, n) , auto-absorption des rayonnements gamma de fission dans la matière nucléaire), les réactions (α, n) à ratio alpha élevé, la présence de sources parasites de rayonnements gamma, le bruit de fond naturel (notamment cosmique), etc.

Ce paragraphe présente des résultats obtenus avec les 4 ratios alpha que l'on peut réaliser avec les 3 sources de ^{252}Cf et celle des 4 plaquettes de plutonium ensemble (1,2, 12, 59 et 72), présentées dans le Tableau 23 et le Tableau 24, sachant qu'en pratique la grande majorité des colis de déchets présentent un ratio alpha inférieur à 10 [Orano]. Dans un premier temps, les paramètres du traitement des données seront optimisés avec des mesures réalisées sans l'écran de plomb de 5 cm protégeant les compteurs de façon à se placer dans des conditions très défavorables en termes de taux de comptage total (plus de 10^6 s^{-1}) et donc de taux de coïncidences accidentelles, sachant ici aussi qu'en réalité la plupart des colis de déchets conduiront avec notre système de mesure à des taux de comptages ne dépassant pas quelques 10^4 s^{-1} . L'objectif étant, pour ces deux paramètres d'influence majeurs (ratio alpha et taux de comptage), d'étudier les limites ultimes du système de mesure. Notamment, l'écran de plomb de 5 cm sera utilisé au §3.6 pour estimer des performances en termes d'extraction du signal net et de limites de détection (avec les différentes matrices) dans des conditions de mesure plus réalistes.

Nous allons donc ici étudier et optimiser, sur une large gamme de ratios alpha et de taux de comptage, les fenêtres (R+A) et (A) du registre à décalage, l'intervalle temporel pour le rejet de la diaphonie, les zones d'intérêt dans les histogrammes 2D en vue d'estimer puis de soustraire les coïncidences accidentelles [Bottau2021].

Nota : au niveau de cette étude de faisabilité, nous n'abordons pas les pertes de linéarité entre signal et masse de plutonium liées aux fortes masses concentrées de matière nucléaire, comme les amas métalliques, car ils ne sont généralement pas significatifs en deçà de 100 g en mesure neutronique passive et la grande majorité des colis de déchets réels contiennent 10 à 100 fois moins de plutonium en moyenne. Néanmoins, compte tenu de la contribution des rayonnements gamma prompts de fission dans la méthode innovante proposée, une étude spécifique devra être menée à terme pour estimer les incertitudes dues à leur auto-absorption en cas de forte masse concentrée de matière nucléaire.

3.5.1 Optimisation de l'analyse des données sans écran de plomb

Comme abordé précédemment dans le §3, l'écran de plomb de 5 cm d'épaisseur permet de limiter le bruit de fond très intense dû aux rayonnements gamma du plutonium et de l'américium, mais il est très pénalisant pour les rayonnements gamma prompts de fission dont moins de 1% parviennent à être détectées. Nous avons utilisé des briques de plomb disponibles et il n'a pas été possible de réaliser et tester des écrans de plomb d'épaisseur moindre. Dans un premier temps, des résultats expérimentaux sont présentés sans écran de plomb avec la matrice organique, afin de mettre en évidence des phénomènes observables uniquement à très fort taux de comptage. D'après les données recueillies sur l'interface graphique FASTER, le temps mort est négligeable sur l'ensemble des voies de mesures et le seul temps mort du système d'acquisition est celui lié à l'intégration de charge (aucune impulsion ne peut alors être détectée sur cette même voie pendant 220 ns, c'est un temps mort non paralysable).

Les courbes de Rossi-alpha obtenues pour les mesures de 10 min avec la source ^{252}Cf ($n^{\circ}3$) seule et avec la source ^{252}Cf accompagnée des sources AmBe, ^{60}Co et ^{137}Cs , sont présentées dans la Figure 71.

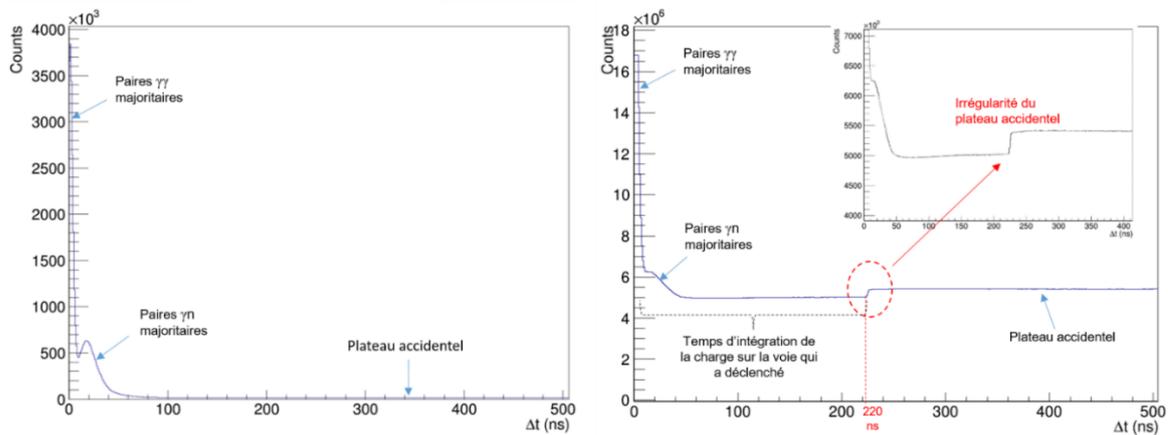


Figure 71. Courbes de Rossi-alpha de mesures avec une source de ^{252}Cf seule (à gauche) et avec les 4 sources simultanées ($^{252}\text{Cf} + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co} + ^{137}\text{Cs}$, à droite) au centre de la matrice organique et sans écran de plomb.

La courbe de Rossi-alpha obtenue pour la source seule de ^{252}Cf nous permet de distinguer correctement la double contribution déjà observée précédemment, à savoir un premier pic correspondant aux intervalles de temps court des paires $\gamma\gamma$, et un second pic correspondant aux intervalles de temps plus longs (entre 10 et 40 ns approximativement) correspondant aux paires γn . Dans cette situation, le taux de comptage total est suffisamment faible ($1,6 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$) pour que le plateau des coïncidences accidentelles soit très peu peuplé (presque confondu avec l'axe des abscisses à l'échelle de la Figure 71). Au contraire, lorsque la source de ^{252}Cf est en présence des sources parasites intenses d'AmBe, de ^{60}Co et de ^{137}Cs , le taux de comptage total est de $3 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$ et le plateau accidentel est très marqué (Figure 71, à droite). On remarque que le plateau accidentel n'est pas régulier avec un décrochement à 220 ns qui correspond au temps mort d'intégration de la charge pendant 220 ns lorsqu'une voie est déclenchée. Pendant cette durée, la voie ne peut plus détecter de nouvelles particules et ces dernières ne peuvent être détectées que sur les 15 autres scintillateurs, ne bénéficiant donc d'une fraction 15/16 de l'efficacité de détection. Ceci entraîne la perte de coups (d'environ 6 %) observée dans les 220 premières nanosecondes de la courbe Rossi-alpha. Quantitativement, le plateau accidentel non perturbé (après 220 ns) comprend environ 5500 coups par canal tandis que la partie sujette au temps mort comprend environ 5100 ± 71 coups par canaux, ce qui est statistiquement compatible avec $15/16 \times 5500 = 5156 \pm 74$.

Ce décrochement du plateau génère un problème pour la méthode du registre à décalage, qui consiste à compter les coïncidences dans une fenêtre (R+A) (0-100ns) soumise à ce temps mort de 15/16 dû à l'intégration des charges et à soustraire le comptage d'une fenêtre (A) (1000-1100 ns) qui ne le subit pas. En cas de fort taux de comptage, lorsque le pallier devient non négligeable, le calcul des doublets et des triplets par la soustraction (R+A) – (A) sous-estimé leur nombre. Une parade consiste à modifier les fenêtres (R+A) et (A) comme indiqué sur la Figure 72 :

- la fenêtre (R+A) ne comprend plus les 10 premières nanosecondes peuplées par les paires $\gamma\gamma$ et donc trop sensibles aux sources parasites de rayonnements gamma, notamment s'ils sont corrélés (^{60}Co) ;
- la fenêtre (A) est cette fois incluse dans le plateau sujet au temps mort d'intégration de la charge, pour que la soustraction (R+A) – (A) ne soit pas biaisée par des temps morts différents, le résultat net correspondant à une perte de 6 %.

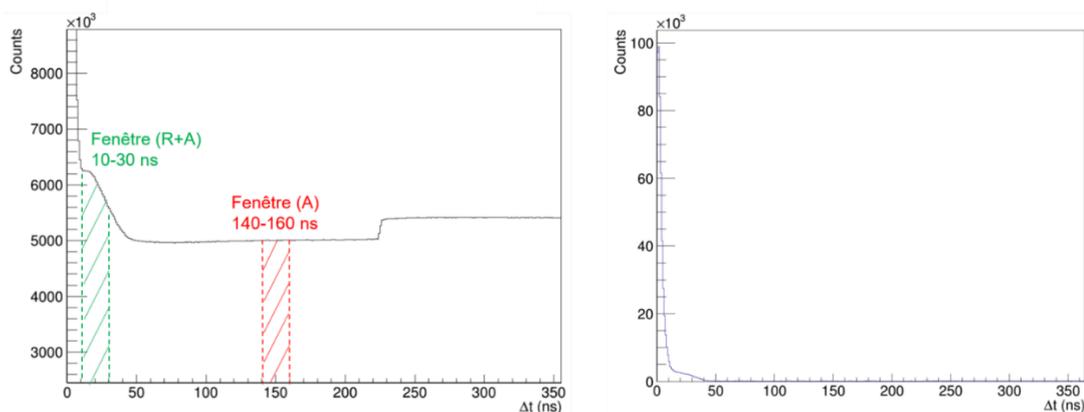


Figure 72. Adaptation des fenêtres de coïncidences du registre à décalage sur une courbe de Rossi-alpha issue de la mesure de 10 minutes avec les 4 sources (à gauche), et courbe de Rossi-alpha du bruit de fond (10 min, à droite).

Le Tableau 51 donne les ordres de multiplicité obtenus lors de la mesure du bruit de fond, et les Tableau 52 et Tableau 53 permettent une comparaison des comptages des registres à décalage avec les deux jeux de fenêtres, (R+A) de 0 à 100 ns ou de 10 à 30 ns et (A) de 1000 à 1100 ns ou de 140 à 160 ns.

Tableau 51. Mesure de 10 min du bruit de fond avec la matrice organique et sans écran de plomb.

	Bruit de fond (matrice organique, sans plomb)							
	Sans rejet de diaphonie				Rejet de diaphonie, $\Delta t \leq 30$ ns			
	R+A (0-100 ns)	A (1000-1100 ns)	R+A (10-30 ns)	A (140-160 ns)	R+A (0-100 ns)	A (1000-1100 ns)	R+A (10-30 ns)	A (140-160 ns)
S (en s⁻¹)	1,37.10 ⁵		1,37.10 ⁵		1,33.10 ⁵		1,33.10 ⁵	
D (en s⁻¹)	(8,74 ± 0,04).10 ²		(9,02 ± 0,01).10 ¹		(4,49 ± 0,02).10 ²		(5,01 ± 0,07).10 ¹	
T (en s⁻¹)	(1,25 ± 0,07).10 ²		(1,07 ± 0,18).10 ¹		(3,47 ± 0,20).10 ¹		3,33 ± 0,46	

Tableau 52. Taux de singulets, doublets et triplets pour une mesure de 10 min en présence de la source de ²⁵²Cf la plus active (n°3) et des sources parasites d'AmBe, ⁶⁰Co et ¹³⁷Cs, obtenus avec la méthode du registre à décalage et les fenêtres (R+A) de 0 à 100 ns et (A) de 1000 à 1100 ns.

	²⁵² Cf (n°3)		²⁵² Cf (n°3) + AmBe		²⁵² Cf (n°3) + AmBe + ⁶⁰ Co		²⁵² Cf (n°3) + AmBe + ⁶⁰ Co + ¹³⁷ Cs	
	R+A (0-100 ns)	A (1000-1100 ns)	R+A (0-100 ns)	A (1000-1100 ns)	R+A (0-100 ns)	A (1000-1100 ns)	R+A (0-100 ns)	A (1000-1100 ns)
	S (en s⁻¹)	1,51.10 ⁵ s ⁻¹		2,56.10 ⁵ s ⁻¹		1,45.10 ⁶ s ⁻¹		3,04.10 ⁶ s ⁻¹
D (en s⁻¹)	5,25.10 ⁴ s ⁻¹		6,32.10 ⁴ s ⁻¹		1,70.10 ⁵ s ⁻¹		1,35.10 ⁵ s ⁻¹	
T (en s⁻¹)	2,04.10 ⁴ s ⁻¹		2,06.10 ⁴ s ⁻¹		(5,00 ± 0,08).10 ³ s ⁻¹		(2,61 ± 0,10).10 ³ s ⁻¹	

Tableau 53. Taux de singulets, doublets et triplets pour une mesure de 10 min avec la source de ²⁵²Cf la plus active (n°3) et les sources parasites d'AmBe, ⁶⁰Co et ¹³⁷Cs, obtenus avec la méthode du registre à décalage et les fenêtres (R+A) de 10 à 30 ns et (A) de 140 à 160 ns.

	²⁵² Cf (n°3)		²⁵² Cf (n°3) + AmBe		²⁵² Cf (n°3) + AmBe + ⁶⁰ Co		²⁵² Cf (n°3) + AmBe + ⁶⁰ Co + ¹³⁷ Cs	
	R+A (10-30 ns)	A (140-160 ns)	R+A (10-30 ns)	A (140-160 ns)	R+A (10-30 ns)	A (140-160 ns)	R+A (10-30 ns)	A (140-160 ns)
	S (en s⁻¹)	1,51.10 ⁵ s ⁻¹		2,56.10 ⁵ s ⁻¹		1,44.10 ⁶ s ⁻¹		3,04.10 ⁶ s ⁻¹
D (en s⁻¹)	1,68.10 ⁴ s ⁻¹		2,13.10 ⁴ s ⁻¹		3,08.10 ⁵ s ⁻¹		3,46.10 ⁵ s ⁻¹	
T (en s⁻¹)	(3,30 ± 0,02).10 ³ s ⁻¹		(3,35 ± 0,02).10 ³ s ⁻¹		(4,09 ± 0,03).10 ³ s ⁻¹		(3,60 ± 0,03).10 ³ s ⁻¹	

La comparaison des triplets des deux derniers tableaux montre une faible influence de la source d'AmBe sur le comptage utile de la source de ²⁵²Cf : 2,04.10⁴ s⁻¹ vs 2,06.10⁴ s⁻¹ avec les fenêtres (R+A) et (A) d'origine, respectivement de 0 à 100 ns et de 1000 à 1100 ns ; 3,30.10³ s⁻¹ vs 3,35.10³ s⁻¹ avec les nouvelles fenêtres (R+A) de 10 à 30 ns et (A) de 140 à 160 ns.

Par contre, on constate une forte sous-estimation du taux de comptage net des triplets (comparé à celui de référence de la source seule de ²⁵²Cf) pour la fenêtre (R+A) de 0 à 100 ns avec l'ajout de la source de ⁶⁰Co (2,88 MBq), encore aggravée par la source de ¹³⁷Cs (7,84 MBq). On peut noter que le taux de comptage total passe d'environ 2,6.10⁵ à 1,4.10⁶ s⁻¹ lors de l'ajout de la source de ⁶⁰Co, puis 3.10⁶ s⁻¹ avec l'ajout du ¹³⁷Cs. En conservant une fenêtre (A) comprise entre 1000 et 1100 ns, c'est-à-dire après la discontinuité liée au temps mort d'intégration de charge, l'augmentation du taux de comptage fait drastiquement chuter la valeur des triplets. En revanche, pour le registre (R+A) entre 10 et 30 ns et (A) entre 140 et 160 ns, la prise en compte des accidentelles avant cette discontinuité permet d'éviter la chute des taux de triplets lorsque le taux de comptage augmente. Le signal est même légèrement surestimé (au maximum 25%) car des coïncidences parasites de type $\gamma\gamma$ ou γn ne sont pas filtrées par la correction des accidentelles inhérente au registre à décalage.

Les coïncidences triples parasites étant dues à la diaphonie neutronique et gamma, le Tableau 54 étudie l'effet du rejet de la diaphonie pendant 30 ns avec ces nouvelles fenêtres (R+A) et (A).

Tableau 54. Taux de singlets, doublets et triplets pour des mesures de 10 min de la source de ^{252}Cf la plus active (n°3) et des sources parasites d'AmBe, ^{60}Co et ^{137}Cs , obtenus par la méthode du registre à décalage avec (R+A) de 10 à 30 ns et (A) de 140 à 160 ns, avec rejet de la diaphonie sur 30 ns.

	^{252}Cf (n°3)		^{252}Cf (n°3) + AmBe		^{252}Cf (n°3) + AmBe + ^{60}Co		^{252}Cf (n°3) + AmBe + ^{60}Co + ^{137}Cs	
	R+A (10-30 ns)	A (140-160 ns)	R+A (10-30 ns)	A (140-160 ns)	R+A (10-30 ns)	A (140-160 ns)	R+A (10-30 ns)	A (140-160 ns)
S (en s⁻¹)	1,41.10 ⁵ s ⁻¹		2,44.10 ⁵ s ⁻¹		1,39.10 ⁶ s ⁻¹		2,93.10 ⁶ s ⁻¹	
D (en s⁻¹)	1,22.10 ⁴ s ⁻¹		1,53.10 ⁴ s ⁻¹		1,62.10 ⁴ s ⁻¹		(1,30 ± 5,53).10 ¹ s ⁻¹	
T (en s⁻¹)	1,60.10 ³ s ⁻¹		1,57.10 ³ s ⁻¹		(7,53 ± 0,13).10 ² s ⁻¹		(-6,93 ± 0,17).10 ² s ⁻¹	

Les taux de doublets et de triplets s'effondrent quand le taux de comptage augmente avec l'ajout des sources parasites de ^{60}Co et ^{137}Cs , car le rejet de la diaphonie crée une nouvelle discontinuité dans le plateau des accidentelles, voir Figure 73. Ceci conduit à soustraire un nombre d'accidentelles estimé au-delà de la discontinuité, dans le registre (A) de 140 à 160 ns, trop grand par rapport aux coïncidences accidentelles présentes dans le registre (R+A), de 10 à 30 ns.

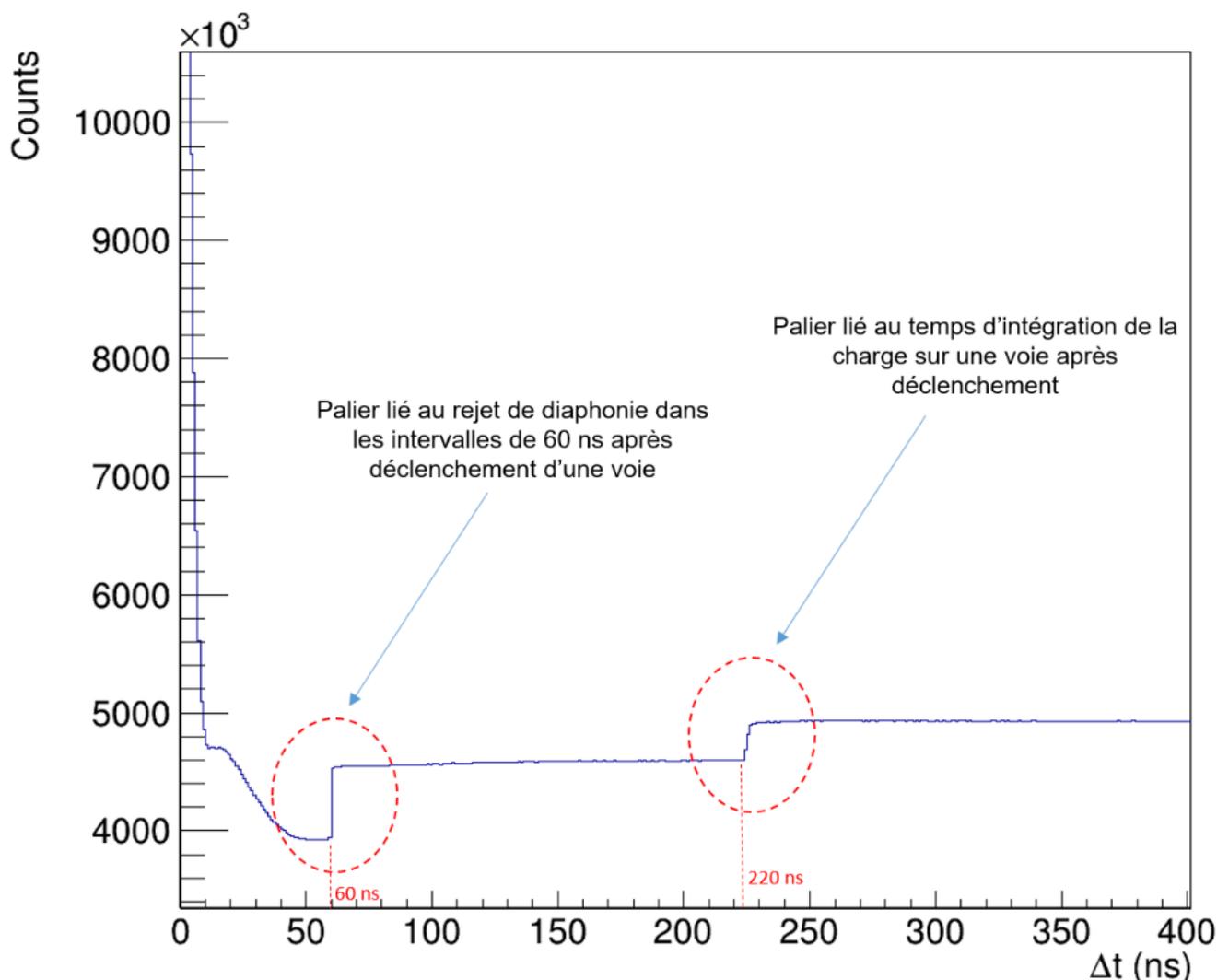


Figure 73. Discontinuités des plateaux des coïncidences accidentelles de la courbe de Rossi-alpha pour une mesure avec les sources de ^{252}Cf , AmBe, ^{60}Co et ^{137}Cs , avec rejet de diaphonie pendant 60 ns.

Le rejet de la diaphonie crée donc un biais important à fort taux de comptage avec les sources gamma parasites. Du point de vue du registre à décalage, la présence d'un écran de plomb devant les détecteurs est donc indispensable pour estimer correctement la masse équivalente de ^{240}Pu .

Pour les histogrammes en 2 dimensions, la Figure 74 ci-dessous présente ceux avec la source de ^{252}Cf seule et avec toutes les sources de ^{252}Cf , AmBe, ^{60}Co et ^{137}Cs ensemble.

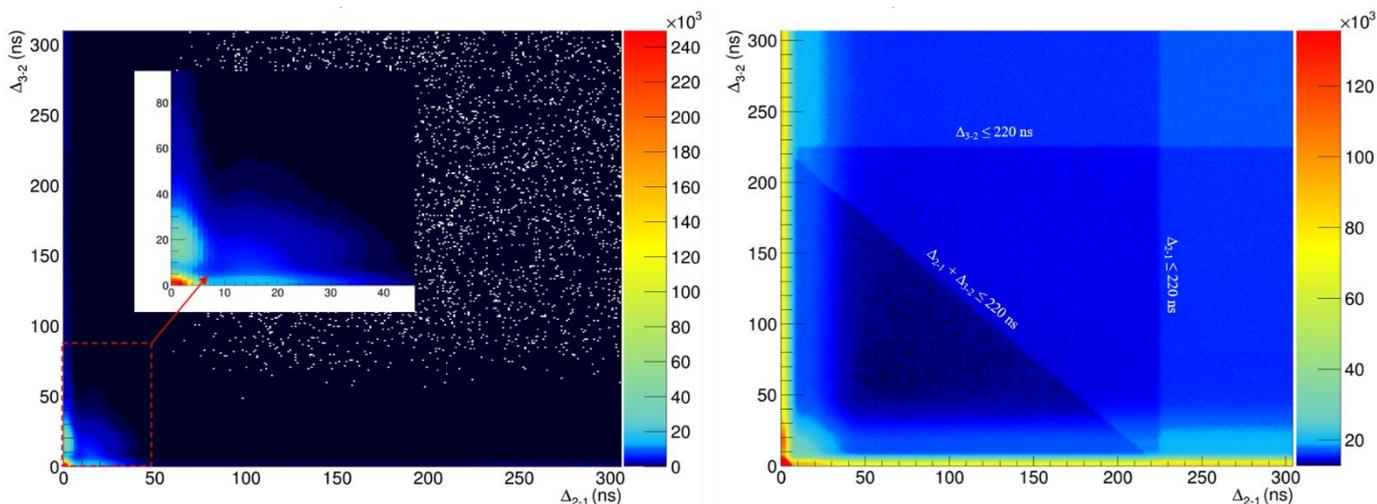


Figure 74. Histogrammes temporels à deux dimensions pour les mesures avec la source de ^{252}Cf seule (à gauche) et avec toutes les sources de ^{252}Cf , AmBe, ^{60}Co et ^{137}Cs (à droite). L'échelle de couleur de l'histogramme de droite est dilatée pour mettre en évidence les paliers dus à la fenêtre de 220 ns d'intégration de la charge (le pixel avec le plus de coïncidences, près de l'origine, comporte en fait $4,5 \cdot 10^5$ coups).

L'histogramme temporel 2D de la source ^{252}Cf seule (Figure 74, à gauche) montre que, malgré la présence de la matrice organique, les zones temporelles identifiées dans le chapitre 2 sont toujours visibles et par suite la zone d'intérêt délimitée par $10 \text{ ns} \leq \Delta_{2-1} \leq 30 \text{ ns}$ et $10 \text{ ns} \leq \Delta_{3-2} \leq 30 \text{ ns}$ est toujours exploitable. L'histogramme de droite, pour l'ensemble des 4 sources, montre par contre des paliers correspondant à ceux observés en 1D sur les courbes de Rossi-alpha, lorsque les taux de comptage sont élevés, correspondant au temps mort d'intégration de charge selon la dimension Δ_{2-1} (palier vertical), selon Δ_{3-2} (palier horizontal) et selon les deux dimensions (palier diagonal). Avec application du rejet de la diaphonie sur 60 ns (par exemple, mais l'effet est similaire avec 30 ns), la Figure 75 montre des paliers supplémentaires à 60 ns.

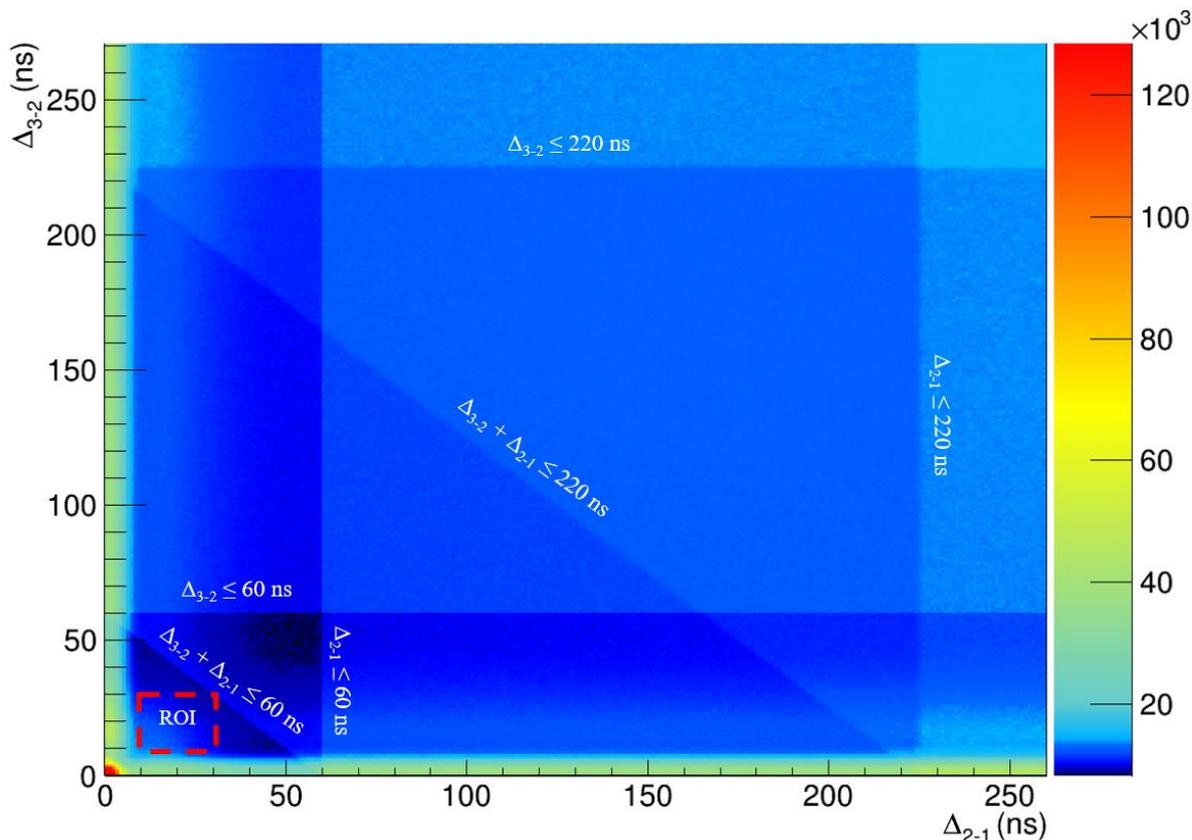


Figure 75. Paliers des temps morts d'intégration de charge et des rejets de diaphonie dans 60 ns pour l'histogramme temporel à deux dimensions de la mesure avec les sources ^{252}Cf , AmBe, ^{60}Co et ^{137}Cs .

Il est important de mentionner ici qu'une différence notable existe entre les deux intervalles temporels pour le rejet de la diaphonie, vis-à-vis de la région d'intérêt. Pour mettre visuellement en évidence la différence, la Figure 76 propose deux agrandissements de la Figure 75 un rejet de diaphonie sur 30 ns ou 60 ns.

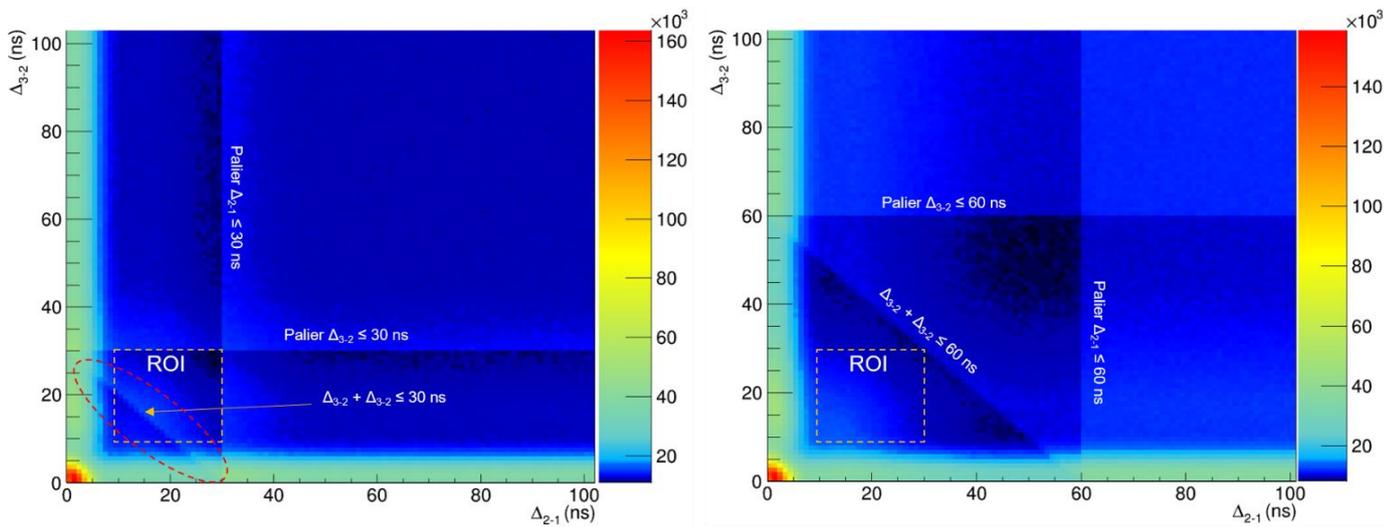


Figure 76. illustration des différences du point de vue des paliers de rejet de la diaphonie vis-à-vis de la position de la ROI en fonction du temps de rejet de la diaphonie (30 ns à gauche, 60 ns à droite).

Dans le cas du rejet de diaphonie pendant 60 ns, l'ensemble des paliers (horizontal, vertical et diagonal) englobe la totalité de la ROI, mais pas pour le rejet de 30 ns dont le palier diagonal traverse la ROI, ce qui peut engendrer des biais dans le comptage du signal de la ROI.

Dans un premier temps, nous essayons de réaliser les comptages simples (avec soustraction du bruit de fond, mais sans correction d'accidentelles) dans la région d'intérêt qui se situe à l'intérieur des paliers de 220 ns. Les comptages obtenus pour les 4 mesures avec ajout progressif des sources parasites en plus de la source de ^{252}Cf , sont présentés dans le Tableau 55.

Tableau 55. Comptages obtenus dans les régions d'intérêts des histogrammes 2D pour les différentes configurations de sources mesurées.

Comptage dans les histogrammes 2D ROI avec Δ_{2-1} et Δ_{3-2} de 10 à 30 ns	^{252}Cf	$^{252}\text{Cf} + \text{AmBe}$	$^{252}\text{Cf} + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co}$	$^{252}\text{Cf} + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co} + ^{137}\text{Cs}$
Sans rejet de diaphonie	$1,11 \cdot 10^6$	$1,21 \cdot 10^6$	$2,72 \cdot 10^6$	$8,91 \cdot 10^6$
Rejet de diaphonie, 30 ns	$6,08 \cdot 10^5$	$6,57 \cdot 10^5$	$1,52 \cdot 10^6$	$5,30 \cdot 10^6$
Rejet de diaphonie, 60 ns	$5,16 \cdot 10^5$	$5,57 \cdot 10^5$	$1,27 \cdot 10^6$	$4,40 \cdot 10^6$

Le rejet de la diaphonie ne permet donc pas de résoudre le problème de surestimation des triplets à fort taux de comptage, car il faut soustraire les coïncidences accidentelles (liées aux taux de comptage) comme sur la courbe Rossi-alpha (Figure 72) en 1D. Les différentes zones de coïncidences accidentelles utilisées pour cette soustraction en 2D sont présentées en Figure 77. De la même manière que pour le registre à décalage, nous allons tester deux approches de soustraction des accidentelles, au-delà ou à l'intérieur des paliers d'intégration de la charge visibles sur cette figure.

Les deux dimensions temporelles génèrent trois types de coïncidences accidentelles à soustraire de la ROI qui contient le signal utile des coïncidences γ_{nn} de fission :

- celles situées le long de l'axe temporel Δ_{3-2} ($A_{\Delta_{3-2}}$ sur la figure) dans une bande où $10 \text{ ns} \leq \Delta_{2-1} \leq 30 \text{ ns}$. On rappelle (voir chapitre 2, Figure 33 et commentaires associés) que la bande $0 \text{ ns} \leq \Delta_{2-1} \leq 10 \text{ ns}$ très intense correspond à des coïncidences accidentelles triples générées par les sources gamma intenses, comprenant une paire corrélée $\gamma\gamma$ et une impulsion non corrélée. La bande $10 \text{ ns} \leq \Delta_{2-1} \leq 30 \text{ ns}$ où on estime ici les coïncidences accidentelles à soustraire de la ROI est éloignée de l'axe Δ_{3-2} de 10 ns car la ROI a été définie pour éviter cette région, qui contient aussi des coïncidences vraies parasites de type $\gamma\gamma n$ dues à l'AmBe et à la diaphonie gamma (voir chapitre 2, Figure 33). La projection de l'histogramme 2D sur l'axe $A_{\Delta_{3-2}}$ en ne sélectionnant que les coïncidences où $10 \text{ ns} \leq \Delta_{2-1} \leq 30 \text{ ns}$ est une courbe de Rossi-alpha avec les paires vraies de type nn de fission pour le ^{252}Cf (voir Figure 34 du Chapitre 2) superposées ici aux coïncidences accidentelles dues au taux de comptage élevé (voir Figure 77, à gauche). Cette courbe diffère légèrement de la Figure 34 du Chapitre 2, qui avait une allure purement exponentielle, car nous sommes ici en présence des 4 sources et l'AmBe apporte une composante de type γn entre 10 ns et 30 ns, d'où un épaulement correspondant à la « bosse » des neutrons (voir Figure 33 au Chapitre 2). Comme on le voit sur cette courbe de Rossi-alpha, il faut estimer le comptage des accidentelles dans une partie constante du plateau, avant ou après la discontinuité due au temps d'intégration des charges à 220 ns. Les coïncidences accidentelles dans les régions $A_{\Delta_{3-2}(\text{proche})}$ et $A_{\Delta_{3-2}(\text{éloignée})}$ correspondent à ces dénombrements respectifs et sont des coïncidences triples avec une paire

- corrélée de type γn (particules 1 et 2 avec $10 \text{ ns} \leq \Delta_{2-1} \leq 30 \text{ ns}$) suivies d'une impulsion accidentelle (particule 3 avec tous les temps possibles de façon équiprobable) ;
- celles situées le long de l'axe temporel Δ_{2-1} ($A_{\Delta_{2-1}}$ sur la Figure 77) avec $10 \text{ ns} \leq \Delta_{3-2} \leq 30 \text{ ns}$, qui correspondent à des paires corrélées γn de fission entre les 2^{ème} et 3^{ème} particules détectées après une 1^{ère} impulsion non corrélée. Là encore, on rappelle que cette bande qui correspond au prolongement de la ROI le long de l'axe Δ_{2-1} en est détachée de 10 ns pour éviter les coïncidences accidentelles $\gamma\gamma$ très intenses dues aux sources gamma, bien visibles entre 0 et 10 ns tout le long de Δ_{2-1} . On voit à nouveau sur la projection de type Rossi-alpha (Figure 78, à droite) les différentes zones du plateau des accidentelles, avec la discontinuité qui conduit à utiliser les zones appelées $A_{\Delta_{2-1}(\text{proche})}$ et $A_{\Delta_{2-1}(\text{éloignée})}$ indiquées en Figure 77 ;
- enfin, celles figurant dans les zones A_{commune} (proche ou éloignée) plus éloignées des axes et qui ne présente aucune corrélation temporelle entre les 3 impulsions détectées. Cette contribution doit être soustraite à l'ensemble de l'histogramme 2D, y compris aux régions accidentelles $A_{\Delta_{2-1}}$ et $A_{\Delta_{3-2}}$ précédentes.

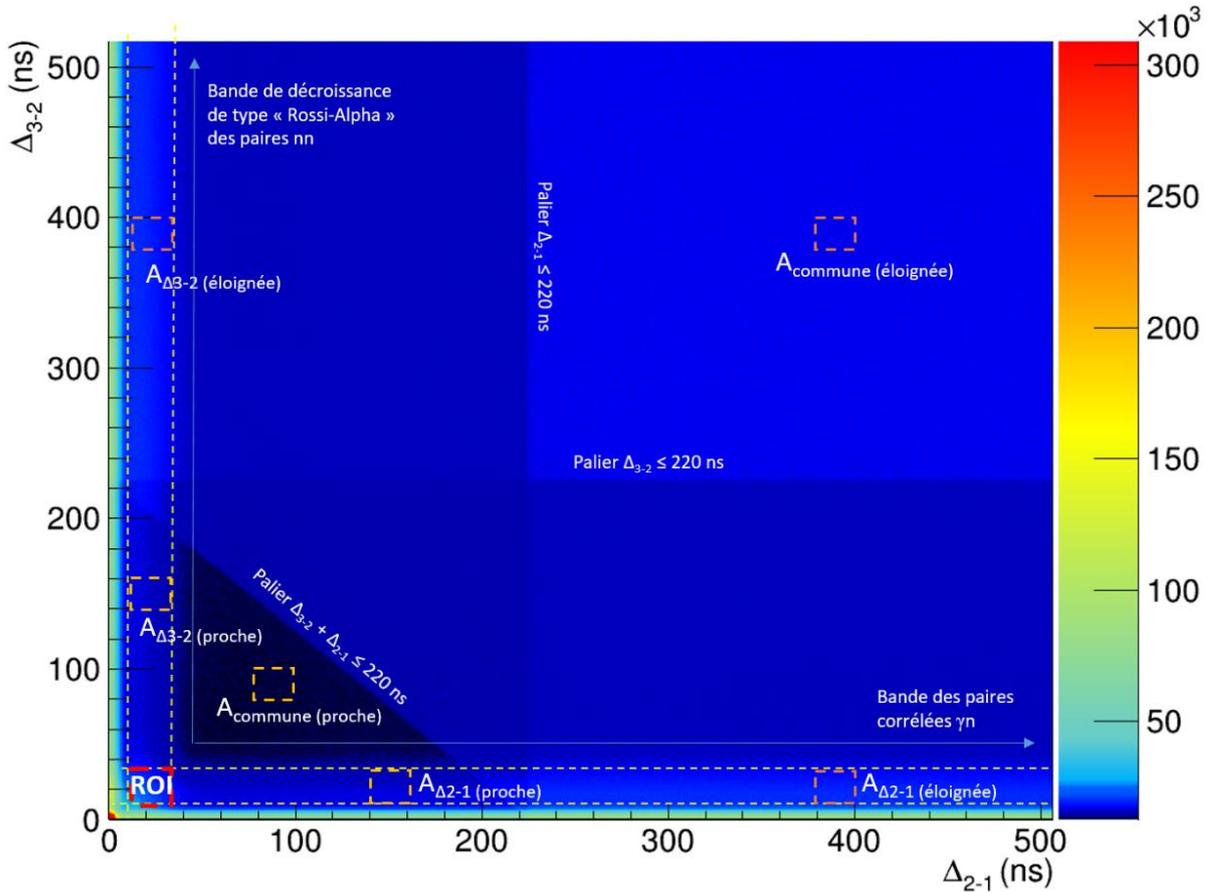


Figure 77. Illustration des zones utilisées pour l'estimation des coïncidences accidentelles dans la région d'intérêt (ROI) des histogrammes temporels 2D : toutes ces zones ont la même surface que la ROI.

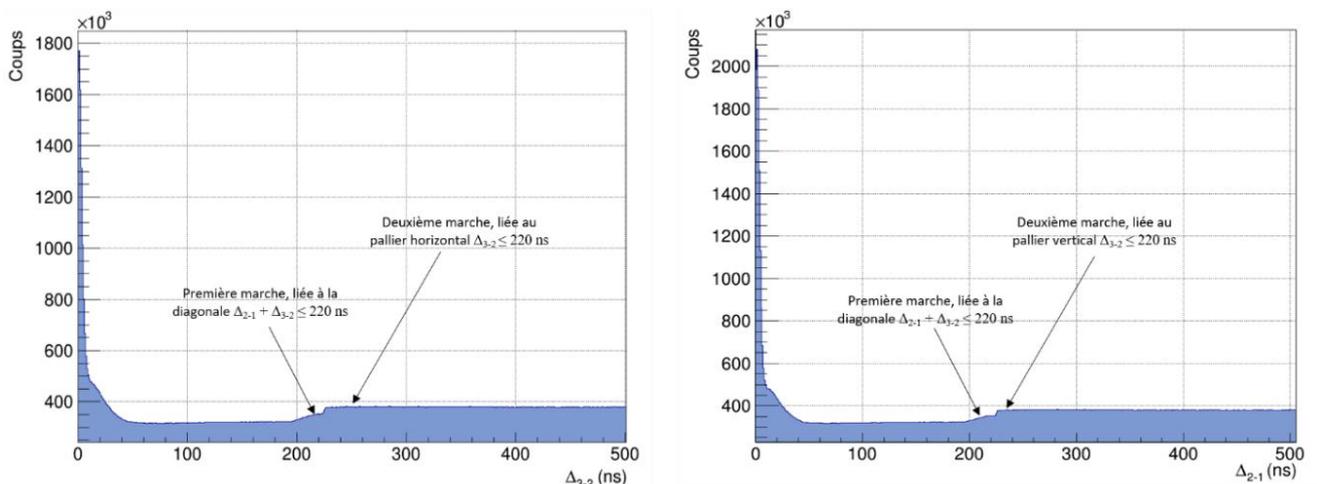


Figure 78. Projection de la bande verticale $10 \leq \Delta_{2-1} \leq 30 \text{ ns}$ sur l'axe Δ_{3-2} (à gauche), et projection de la bande horizontale $10 \leq \Delta_{3-2} \leq 30 \text{ ns}$ sur l'axe Δ_{2-1} (à droite), de l'histogramme temporel présenté en Figure 77.

La soustraction des coïncidences accidentelles se fait alors de la manière mathématique suivante :

$$A_{\Delta 2-1 \text{ nette}} = A_{\Delta 2-1} - A_{\text{commune}} \quad (42)$$

$$A_{\Delta 3-2 \text{ nette}} = A_{\Delta 3-2} - A_{\text{commune}} \quad (43)$$

$$ROI_{\text{nette}} = (ROI - A_{\text{commune}}) - A_{\Delta 2-1 \text{ nette}} - A_{\Delta 3-2 \text{ nette}} \quad (44)$$

où :

- $A_{\Delta 2-1 \text{ nette}}$ est le comptage des coïncidences accidentelles dans la bande proche de l'axe Δ_{2-1} (dans la zone proche ou éloignée) net de la contribution des accidentelles globales A_{commune} (zone proche ou éloignée) ;
- $A_{\Delta 3-2 \text{ nette}}$ est le comptage des accidentelles selon la bande de l'axe Δ_{3-2} , net de la contribution des accidentelles globale A_{commune} ;
- ROI_{nette} est le comptage dans la région d'intérêt corrigé des contributions accidentelles, qui constitue la grandeur d'intérêt pour estimer la masse de ^{240}Pu équivalent.

Les équations (42), (43) et (44) pourront s'appliquer à une estimation des accidentelles avant ou après la discontinuité du temps mort d'intégration de la charge (A_{proche} et $A_{\text{éloignée}}$ respectivement, en Figure 77). Une autre approche reposant sur des facteurs de passage entre les paliers (ratios des comptages avant/après) sera évoquée comme perspective intéressante en vue de perfectionner les traitements. Le Tableau 56 complète les résultats du Tableau 55 par ceux obtenus avec la correction des accidentelles (dites proches ou éloignées).

Tableau 56. Résultats des comptages bruts et corrigés obtenus dans le cadre des configurations testées avec le ^{252}Cf , et selon les différentes stratégies de rejet de diaphonie.

ROI sans correction des coïncidences accidentelles (Tableau 28)			
Mesures (10 min)	Sans rejet de diaphonie	Rejet de diaphonie $\Delta t \leq 30$ ns	Rejet de diaphonie $\Delta t \leq 60$ ns
^{252}Cf	1 108 059 ± 1 052	608 747 ± 780	516 692 ± 718
$^{252}\text{Cf} + \text{AmBe}$	1 212 248 ± 1 101	656 795 ± 810	557 008 ± 746
$^{252}\text{Cf} + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co}$	2 717 773 ± 1 648	1 518 669 ± 1 232	1 266 772 ± 1 125
$^{252}\text{Cf} + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co} + ^{137}\text{Cs}$	8 909 855 ± 2 984	5 298 044 ± 2 301	4 395 927 ± 2 096
ROI avec correction des accidentelles proches			
	Sans rejet de diaphonie	Rejet de diaphonie $\Delta t \leq 30$ ns	Rejet de diaphonie $\Delta t \leq 60$ ns
^{252}Cf	1 040 691 ± 1 535	561 408 ± 1 197	470 177 ± 1 132
$^{252}\text{Cf} + \text{AmBe}$	1 077 923 ± 1 835	562 931 ± 1 448	464 515 ± 1 379
$^{252}\text{Cf} + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co}$	1 163 631 ± 5 938	489 142 ± 5 103	258 938 ± 4 961
$^{252}\text{Cf} + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co} + ^{137}\text{Cs}$	1 195 854 ± 14 942	290 036 ± 13 287	- 447 903 ± 12 917
ROI avec correction des accidentelles éloignées			
	Sans rejet de diaphonie	Rejet de diaphonie $\Delta t \leq 30$ ns	Rejet de diaphonie $\Delta t \leq 60$ ns
^{252}Cf	1 028 896 ± 1 554	554 522 ± 1 204	463 489 ± 1 139
$^{252}\text{Cf} + \text{AmBe}$	1 053 088 ± 1 880	547 305 ± 1 479	449 488 ± 1 410
$^{252}\text{Cf} + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co}$	902 825 ± 6 489	347 813 ± 5 567	124 335 ± 5 417
$^{252}\text{Cf} + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co} + ^{137}\text{Cs}$	389 791 ± 16 328	- 47 537 ± 14 488	- 757 458 ± 14 076

Quand le taux de comptage total est trop élevé (au-delà de 10^6 s^{-1} avec l'ajout du ^{60}Co et 3.10^6 s^{-1} avec le ^{137}Cs en plus), la correction avec les accidentelles dites éloignées ne fonctionne plus en raison des différences de temps mort dans la ROI (temps mort élevé) et les zones d'estimation des accidentelles éloignées (temps mort plus faible), ce qui entraîne une sous-estimation importante du comptage net. Par contre, la correction avec les accidentelles dites proches est satisfaisante, du moins lorsque le rejet de la diaphonie n'est pas appliqué, avec un comptage net dans la ROI en présence des 4 sources qui ne diffère que d'environ 15 % de celui avec la seule source de ^{252}Cf (1195854 vs. 1040691). Cette légère surestimation provient d'événements parasites de diaphonie de diffusion neutronique, lorsqu'un neutron diffusé d'un détecteur à l'autre conduit à des détections séparées de 10 à 30 ns dans la plage temporelle de la ROI, quand le rejet de la diaphonie n'est pas appliqué. Si on rejette la diaphonie pendant 30 ou 60 ns, le comptage net chute rapidement lorsque le taux de comptage augmente car les zones d'estimation des accidentelles proches, bien que situées avant les discontinuités à 220 ns liées au temps d'intégration de la charge, sont au-delà des discontinuités générées par le rejet de la diaphonie à 30 ou 60 ns (voir Figure 75 pour 60 ns, par exemple). Pour ne pas être impacté par ces nouveaux paliers, il faudrait pouvoir estimer les accidentelles dans des intervalles de temps inférieurs à 30 ou 60 ns, ce qui est impossible car ces zones contiennent aussi le signal utile des coïncidences vraies de fission : on voit bien sur la Figure 75 qu'il est impossible de définir des zones d'estimation des accidentelles différentes de la ROI en deçà du pallier de 60 ns dû au rejet de

la diaphonie. Une correction de ces temps morts, par des facteurs de passage à appliquer entre les différents paliers, liés à l'ampleur de chaque discontinuité (quantifiable expérimentalement comme on le voit sur la Figure 73), devra être étudiée.

La méthode de la soustraction des accidentelles proches dans les histogrammes 2D, sans correction de la diaphonie, permet donc de retrouver le signal net mesuré avec la seule source de ^{252}Cf malgré l'ajout des sources parasites. Nous sommes cependant ici dans une configuration de ratio alpha faible ($\alpha = 1,2$). Or nous avons vu au Chapitre 2 que la source AmBe peut créer des coïncidences triples parasites γ_{nn} dans la région d'intérêt (ROI) des coïncidences γ_{nn} de fission, en raison de l'émission d'un neutron avec un rayonnement gamma corrélé combinée à la diaphonie de diffusion neutronique. Pour tester la soustraction des accidentelles pour des ratios alpha plus élevés, le Tableau 57 présente des mesures avec les plaquettes de plutonium qui présentent un ratio alpha beaucoup plus défavorable ($\alpha = 72$) avec la même source d'AmBe.

Tableau 57. Résultats des comptages nets obtenus dans le cadre des configurations testées avec les 4 plaquettes de plutonium et différentes durées de rejet de diaphonie.

Mesures (10 min)	ROI sans correction		
	Sans rejet de diaphonie	Rejet de diaphonie $\Delta t \leq 30$ ns	Rejet de diaphonie $\Delta t \leq 60$ ns
Pu	52 931 ± 133	29 811 ± 100	24 434 ± 92
Pu + AmBe	197 328 ± 444	105 122 ± 324	90 171 ± 300
Pu + AmBe + ^{60}Co	1 982 642 ± 1 408	1 155 546 ± 1 074	967 628 ± 983
Pu + AmBe + ^{60}Co + ^{137}Cs	9 379 212 ± 3 062	5 736 038 ± 2 395	4 768 913 ± 2 183
ROI avec correction des accidentelles proches			
	Sans rejet de diaphonie	Rejet de diaphonie $\Delta t \leq 30$ ns	Rejet de diaphonie $\Delta t \leq 60$ ns
Pu	14 575 ± 588	5 935 ± 524	1 705 ± 515
Pu + AmBe	73 970 ± 1 626	21 998 ± 1 416	7 752 ± 1387
Pu + AmBe + ^{60}Co	200 370 ± 6 802	-2 506 ± 6 025	-166 668 ± 5 886
Pu + AmBe + ^{60}Co + ^{137}Cs	249 312 ± 16 766	-159 837 ± 15 047	-923 981 ± 14 628
ROI avec correction des accidentelles éloignées			
	Sans rejet de diaphonie	Rejet de diaphonie $\Delta t \leq 30$ ns	Rejet de diaphonie $\Delta t \leq 60$ ns
Pu	11 046 ± 636	4 923 ± 568	726 ± 559
Pu + AmBe	59 823 ± 1 738	14 427 ± 1 515	416 ± 1 486
Pu + AmBe + ^{60}Co	4 578 ± 7 438	-86 093 ± 6 576	-245 928 ± 6 425
Pu + AmBe + ^{60}Co + ^{137}Cs	-508 981 ± 18 287	-417 693 ± 16 376	-1 158 953 ± 15 904

La présence d'un signal utile beaucoup moins intense (environ 3 g de $^{240}\text{Pu}_{\text{éq}}$ contre 186 g précédemment avec la source de ^{252}Cf , la plus active dont nous disposons) génère des écarts rédhibitoires sur le signal net dès l'ajout de la source parasite d'AmBe, et même des sous-estimations très importantes dues au rejet de la diaphonie qui seront étudiées plus en détail par simulation au paragraphe suivant.

Une conclusion importante à ce stade est qu'un taux de comptage élevé est très pénalisant pour le système d'acquisition et de traitement des données, avec la présence des discontinuités (dues aux fenêtres d'intégration de la charge et de rejet de la diaphonie) dans les plateaux des coïncidences accidentelles. Aussi, un écran de plomb de 5 cm a été implémenté devant les détecteurs pour l'estimation des performances présentée au §3.6. Cette étude sans écran de plomb a permis de mettre clairement en évidence les limites ultimes du système de mesure et de l'analyse des données à de forts taux de comptage (plus de 10^6 s^{-1}), qui n'auraient pas pu être atteintes avec les sources disponibles au laboratoire et l'écran de 5 cm de plomb. A titre d'illustration, la Figure 79 compare les histogrammes à deux dimensions pour la configuration la plus pénalisante ($^{252}\text{Cf} + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co} + ^{137}\text{Cs}$), sans et avec l'écran de plomb. Les taux de comptages totaux sont respectivement de $2,9 \cdot 10^6$ et $2,5 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$. Avec plomb, on n'observe plus les paliers marqués dans les plateaux des accidentelles. L'échelle de couleurs de l'histogramme de droite (avec plomb) a été ajustée pour faire ressortir les deux bandes de coïncidences accidentelles le long des axes, mais le nombre de coups est beaucoup moins grand que dans l'histogramme de gauche (sans plomb).

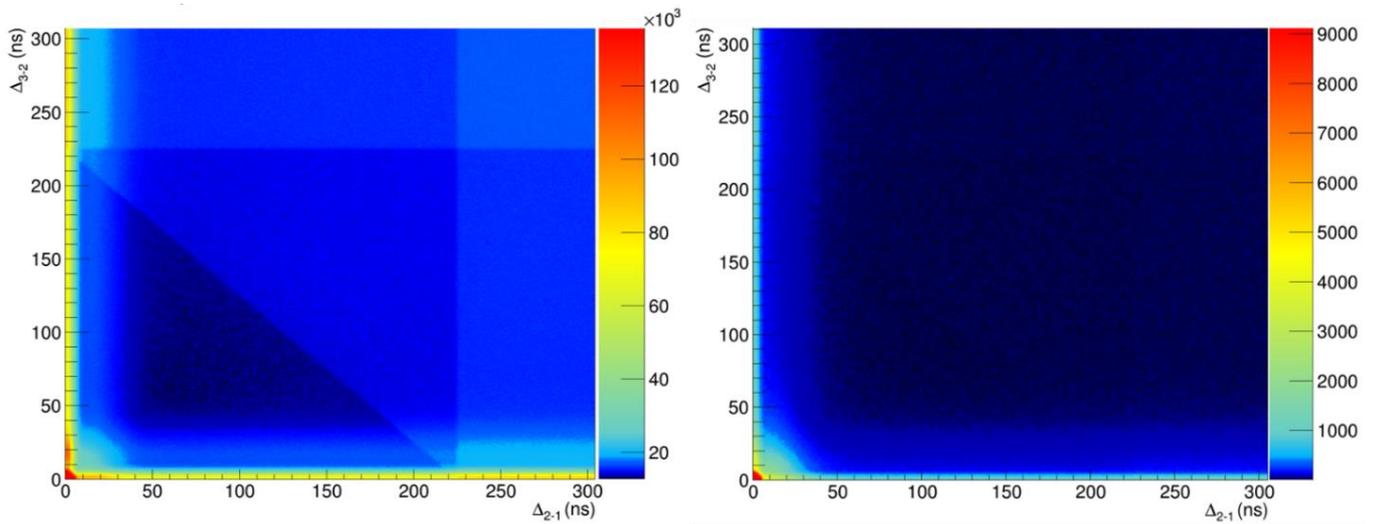


Figure 79. Comparaison visuelle des histogrammes temporels à deux dimensions pour les mesures de 10 min avec les 4 sources en simultanée sans écran de plomb (à gauche) et avec l'écran de plomb (à droite).

3.5.2 Etude par simulation du rejet de la diaphonie à ratio alpha croissant

Le rejet de la diaphonie doit faire l'objet d'un compromis avec la perte d'une partie du signal utile de fission (^{252}Cf ou Pu) qu'il peut occasionner, notamment en présence de signaux parasites dus aux réactions (α, n) . Nous cherchons ici à mieux cerner, par simulation, l'apport et les limites du rejet de la diaphonie en vue de l'optimiser. Des mesures de 1 min d'une source ponctuelle de 10 g de ^{240}Pu sont simulées avec MCNPX-PoliMi pour le système de 16 détecteurs sans écran de plomb, sans fût maquette et donc sans matrice de déchets. Les rayonnements gamma émis par le plutonium suite aux désintégrations α et β de ses isotopes (et de ^{241}Am) ne sont pas modélisés car les analyses qui vont suivre se focalisent sur le ratio alpha entre émission (α, n) et fission spontanée. La source de ^{240}Pu est donc simulée en présence d'une source AmBe d'activité croissante pour étudier des ratios alpha de 1 à 100. L'algorithme de rejet de la diaphonie décrit au Chapitre 2 de ce manuscrit est comparé ici à un rejet dit « parfait », inapplicable expérimentalement mais réalisable en simulation grâce aux informations de suivi des particules fournies par MCNPX-PoliMi, voir Figure 80.

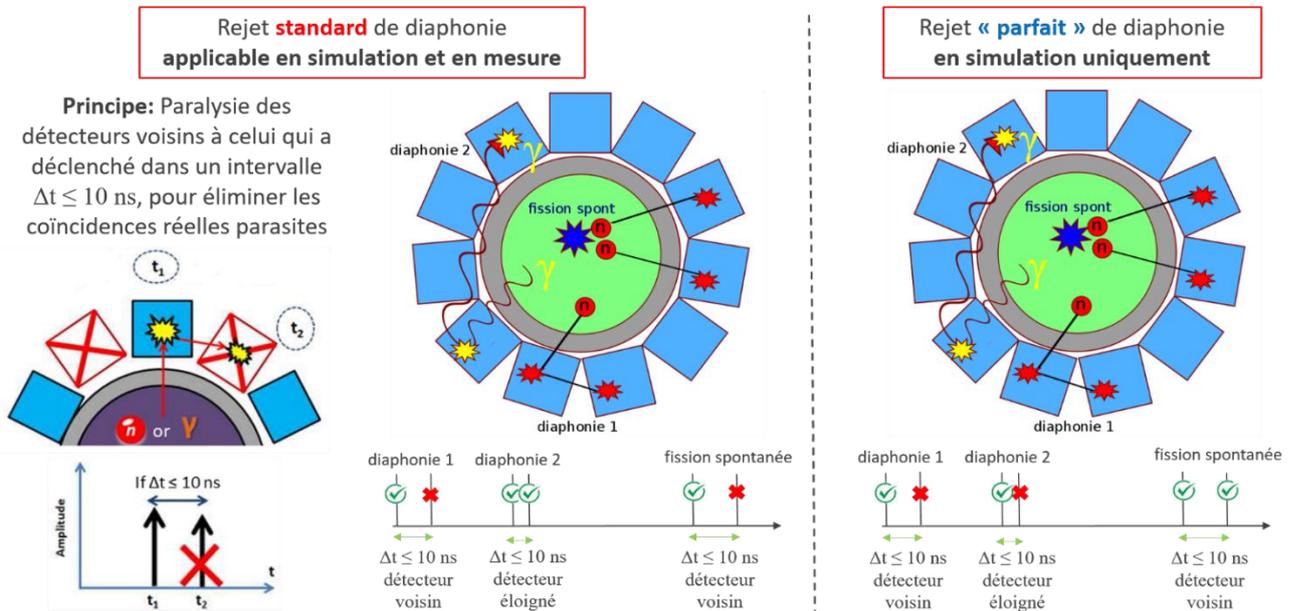


Figure 80. Illustration de la méthode standard de rejet de la diaphonie telle qu'utilisée pour le traitement des mesures (à gauche) et d'un rejet parfait uniquement applicable en simulation (à droite).

L'algorithme de rejet parfait de la diaphonie permet, contrairement à l'algorithme standard utilisé pour les mesures, de conserver l'ensemble du signal utile de fission et d'éliminer la totalité des événements parasites de diaphonie, quels que soient les détecteurs impliqués dans la diaphonie (voisins ou non), MCNPX-PoliMi permettant d'identifier ces événements liés à une même histoire (même fission ou réaction (α, n) source) et les détecteurs impliqués.

Nous étudions donc ici le temps optimal de rejet de la diaphonie (comme au Chapitre 2 pour 8 détecteurs dans le système mais ici avec 16 détecteurs), l'efficacité du rejet de diaphonie « standard » (appliqué aux mesures) en le

comparant au rejet « parfait », pour les différents ratios alpha simulés, et notamment son efficacité contre la diaphonie de diffusion des neutrons de réactions (α, n).

Nous comparons également la correction des coïncidences accidentelles avec la méthode dite des « accidentelles proches » (avant le palier d'intégration de charge) par rapport à celle des « accidentelles éloignées » (après ce palier). Le temps de paralysie des voies correspond ici au temps d'intégration de la charge de 200 ns. Les comptages dans les ROI sont corrigés des contributions accidentelles avec la méthode présentée précédemment, rappelée dans la Figure 81.

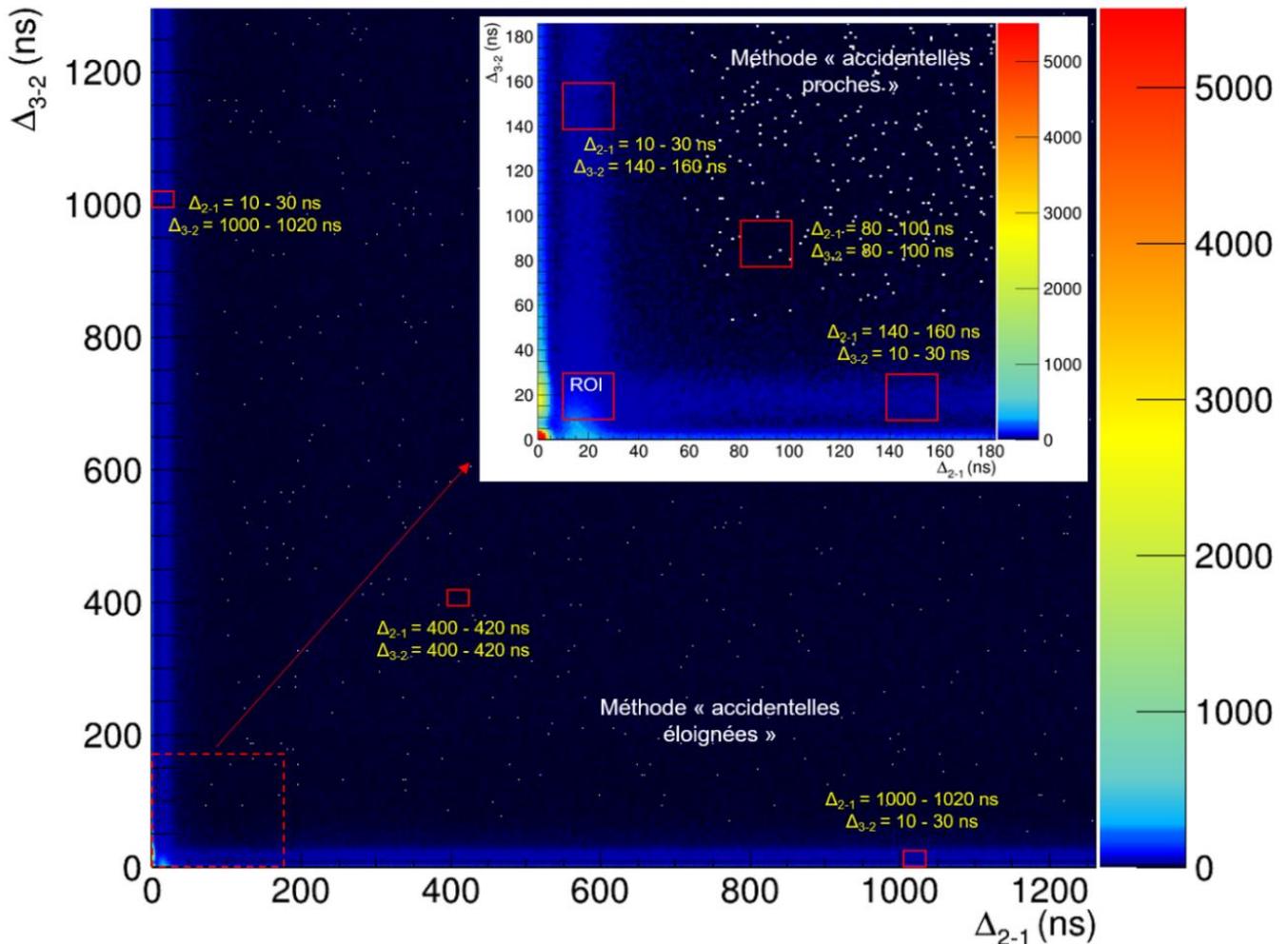


Figure 81. Régions des coïncidences accidentelles utilisées pour la correction des comptages de la région d'intérêt (ROI).

La Figure 82 présente tout d'abord les comptages bruts obtenus dans les ROI (sans correction des coïncidences accidentelles) pour un ratio alpha croissant (1, 5, 10, 25, 50 et 100) lorsque la diaphonie est rejetée de manière standard (comme pour les mesures) ou de manière parfaite sur des intervalles de 10 ns, 30 ns ou 60 ns. Quel que soit le rejet de la diaphonie, le comptage brut de la ROI sans correction des accidentelles conduit à surestimer le signal utile (avec seulement le ^{240}Pu , i.e. à ratio alpha nul) de façon rédhibitoire quand le ratio alpha dépasse une valeur de 20 environ.

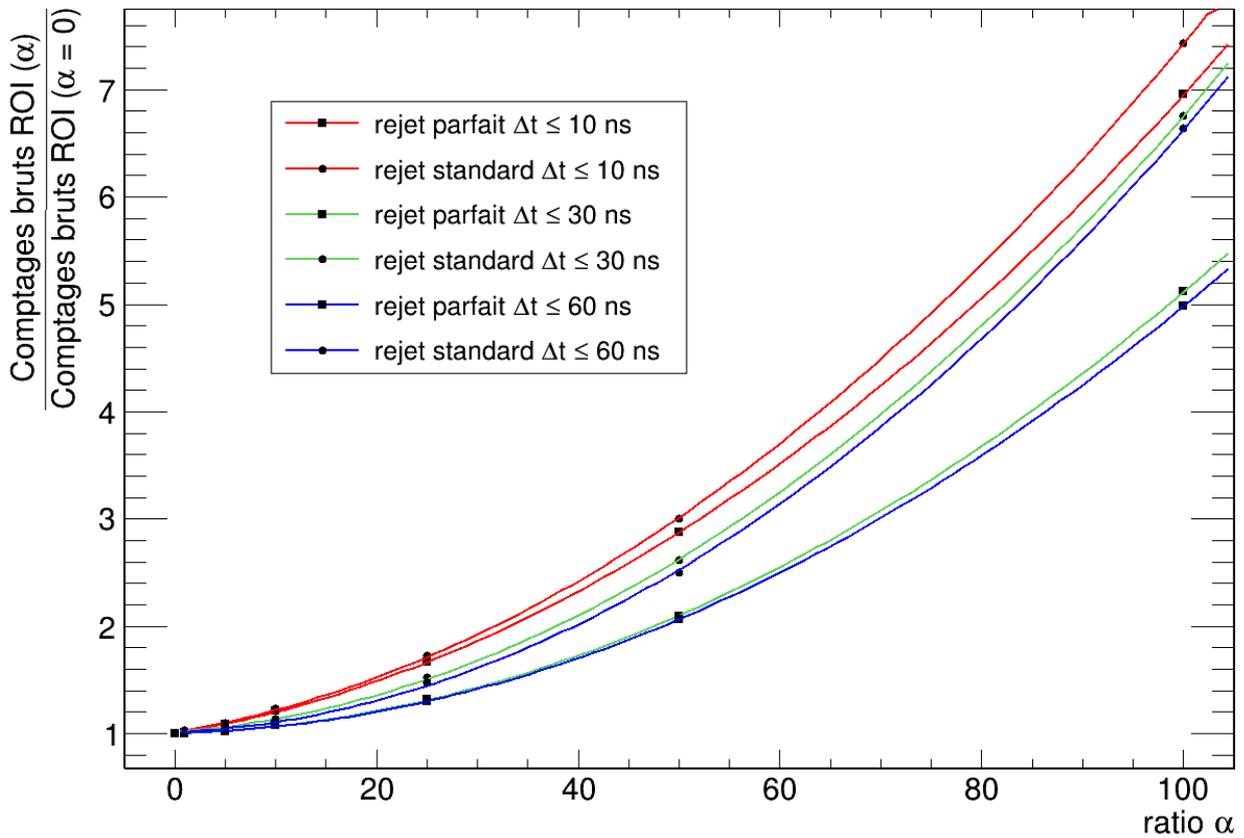


Figure 82. Evolution des comptages bruts simulés dans les ROI en fonction du ratio alpha appliqué avec 10 g de ^{240}Pu .

Les Figure 83 et Figure 84 présentent les résultats pour les deux méthodes de corrections des coïncidences accidentelles « proches » et « éloignées » (voir illustration en Figure 81).

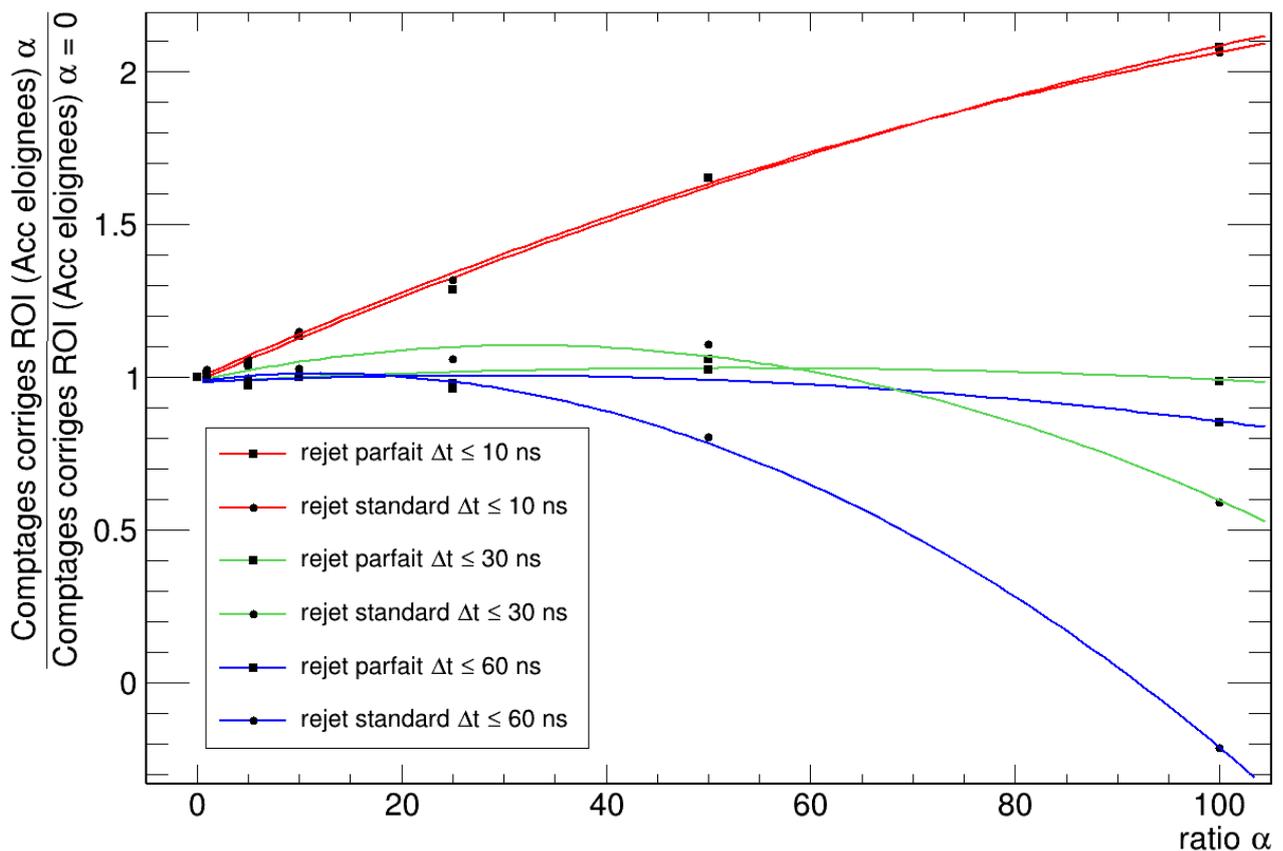


Figure 83. Evolution des comptages simulés dans les ROI, corrigés par la méthode des coïncidences accidentelles « éloignées », en fonction du ratio alpha avec 10 g de ^{240}Pu .

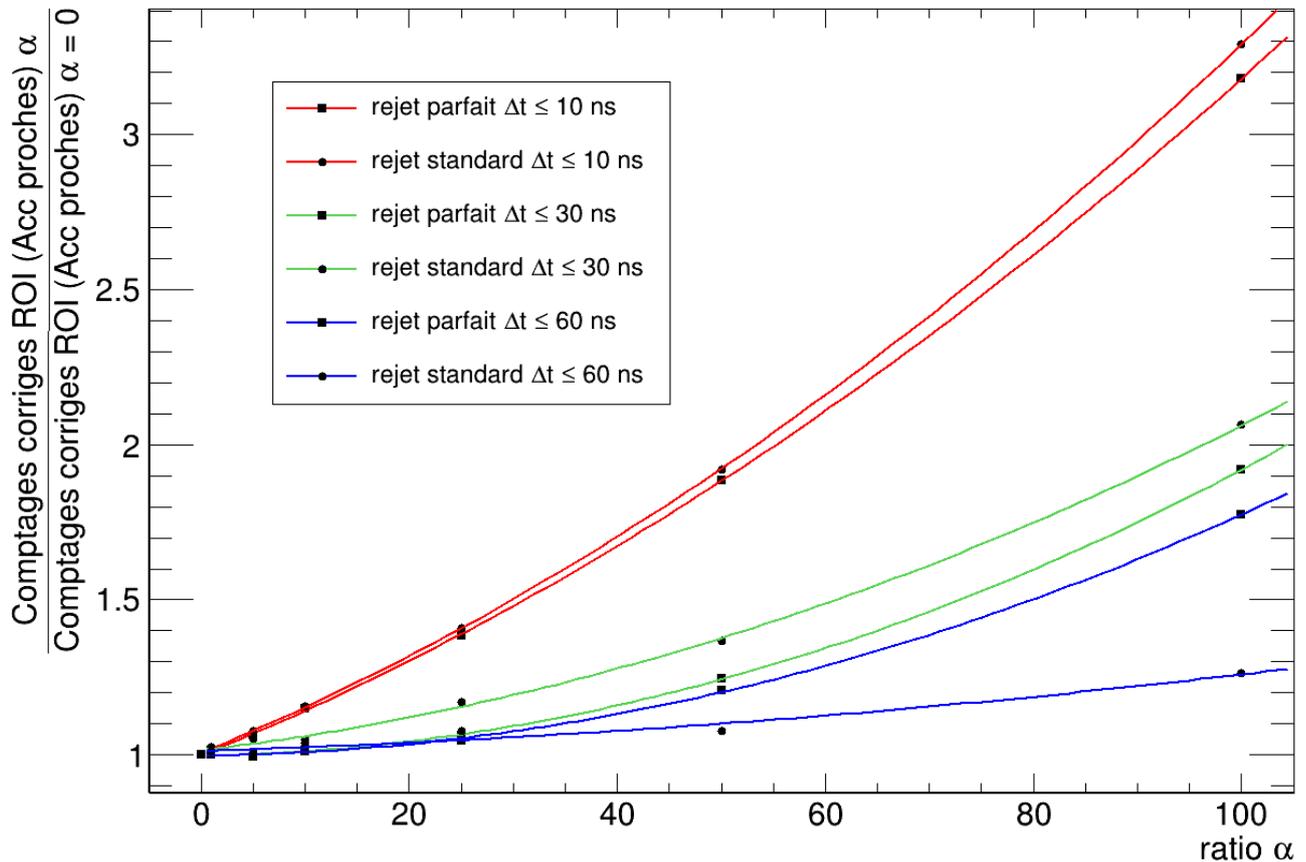


Figure 84. Evolution des comptages simulés dans les ROI, corrigés par la méthode des coïncidences accidentelles « proches », en fonction du ratio alpha avec 10 g de ^{240}Pu .

Ces figures montrent que le rejet « parfait » ou « standard » de la diaphonie sur 10 ns (courbes rouges) ne permet pas de retrouver le signal utile du ^{240}Pu mesuré sans AmBe quand le ratio alpha augmente, quelle que soit la correction des coïncidences accidentelles appliquée (« proches » ou « éloignées »). Cette durée est trop courte pour un rejet efficace de la diaphonie.

Pour la méthode de soustraction des « accidentelles éloignées » (Figure 83), lorsque le rejet standard de la diaphonie est effectué jusqu'à 60 ns, le signal net reste similaire à celui mesuré sans AmBe jusqu'à un ratio alpha de 25 environ, puis il diminue fortement pour même devenir négatif avec le ratio alpha de 100. Ceci est dû aux paliers liés à l'intégration de la charge et au rejet de la diaphonie (voir §3.5.1) observés à taux de comptage élevé, ici de l'ordre de $4 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$ pour le ratio alpha de 100. Par contre, lorsque le rejet standard sur 30 ns est utilisé, la perte de signal est nettement moins importante (environ 40% pour le ratio alpha de 100). Les rejets parfaits de la diaphonie à 30 ns et 60 ns donnent eux des résultats similaires. Cette différence de comportement entre les rejets standards (comme en mesure) à 30 et 60 ns, à fort taux de comptage donc avec de nombreuses coïncidences accidentelles, pourraient provenir de la méthode même de rejet de la diaphonie, nous y reviendrons plus en détail au niveau de la Figure 85.

En Figure 84, avec la méthode de soustraction des « accidentelles proches », les comptages nets sont stables jusqu'à un ratio alpha d'environ 50, puis ils augmentent car les paliers dus à l'intégration de la charge n'impactent plus les zones d'estimation des coïncidences accidentelles. Il est intéressant de noter que le rejet standard sur 60 ns permet de retrouver le signal de référence (avec le ^{240}Pu seul) jusqu'au ratio alpha de 100, avec une légère surestimation de l'ordre de 25%. Ceci est dû en réalité à deux biais opposés, d'un côté la surestimation due au rejet imparfait de la diaphonie neutronique à fort ratio alpha, de l'autre la sous-estimation que nous venons d'évoquer à fort taux de comptage avec le rejet pendant 60 ns.

Dans l'état actuel du traitement de la diaphonie, lorsqu'une impulsion est identifiée comme due à la diaphonie (i.e. dans un détecteur voisin du 1^{er} qui a déclenché la fenêtre d'analyse et dans un intervalle temporel inférieur à 30 ou 60 ns), celle-ci est supprimée du train d'impulsions avant même l'application du registre à décalage pour le comptage des triplets ou le tracé des histogrammes temporels à deux dimensions. Si celle-ci est liée à une fission spontanée et non à une diaphonie, une coïncidence utile est donc perdue. La Figure 85 montre l'exemple d'une impulsion parasite en coïncidence accidentelle (notée « a ») avec les impulsions d'une fission spontanée, provoquant la suppression de la première impulsion de celles-ci.

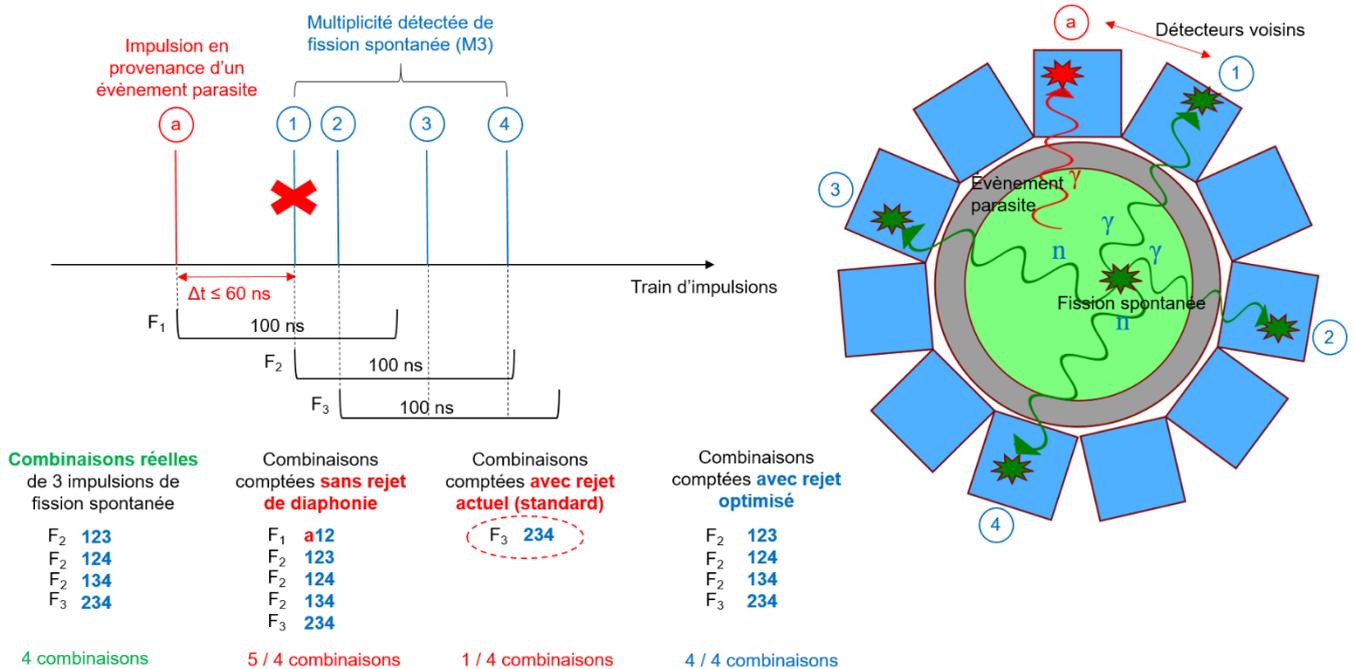


Figure 85. Comparaison du traitement actuel (« standard ») de la diaphonie avec le rejet « optimisé ».

Ici, le rejet standard de la diaphonie provoque la suppression de la particule n°1 de la fission spontanée, ce qui engendre la suppression de la coïncidence parasite « a12 » de la première fenêtre F1 de coïncidence, mais aussi, au rang suivant du registre à décalage (F2), celle des combinaisons « 123 », « 124 » et « 134 ». Au rang « F3 », la combinaison « 234 » reste comptée, mais une grande partie des coïncidences utiles ont été perdues. Une amélioration de l'algorithme, nommé ici rejet « optimisé », consisterait donc à ne pas supprimer la particule n°1 du train d'impulsion mais uniquement la combinaison « a12 » identifiée comme une diaphonie, ce qui permet de conserver les 3 combinaisons utiles précédemment rejetées. Ce nouvel algorithme ne fait perdre que les coïncidences utiles où 2 particules de fission spontanée sont détectées par deux scintillateurs voisins dans des intervalles de moins de 30 ou 60 ns.

Les Figure 86 et Figure 87 montrent l'effet de ce rejet optimisé de la diaphonie qui préserve d'avantage les coïncidences utiles de fission que le rejet standard utilisé jusqu'à présent. On constate effectivement un signal net plus important (courbes bleues vs. rouges), mais aussi une efficacité similaire des rejets à 30 et 60 ns. En effet, l'essentiel des événements de diaphonie comprend des impulsions séparées de moins de 30 ns [Simony-Deyglun2016], contrairement au dispositif du Chapitre 2 sans fût ni ceinture de plomb, avec juste les sources au centre des détecteurs, où la diaphonie de diffusion neutronique entre détecteurs éloignés pouvait intervenir avec des temps de vol plus importants. Avec l'algorithme de rejet standard pendant 60 ns, beaucoup de coïncidences utiles de fission sont perdues à fort taux de comptage en raison des coïncidences accidentelles, mais nettement moins avec la fenêtre plus courte de 30 ns, d'où les écarts importants constatés auparavant à fort taux de comptage (Figure 83 et Figure 84).

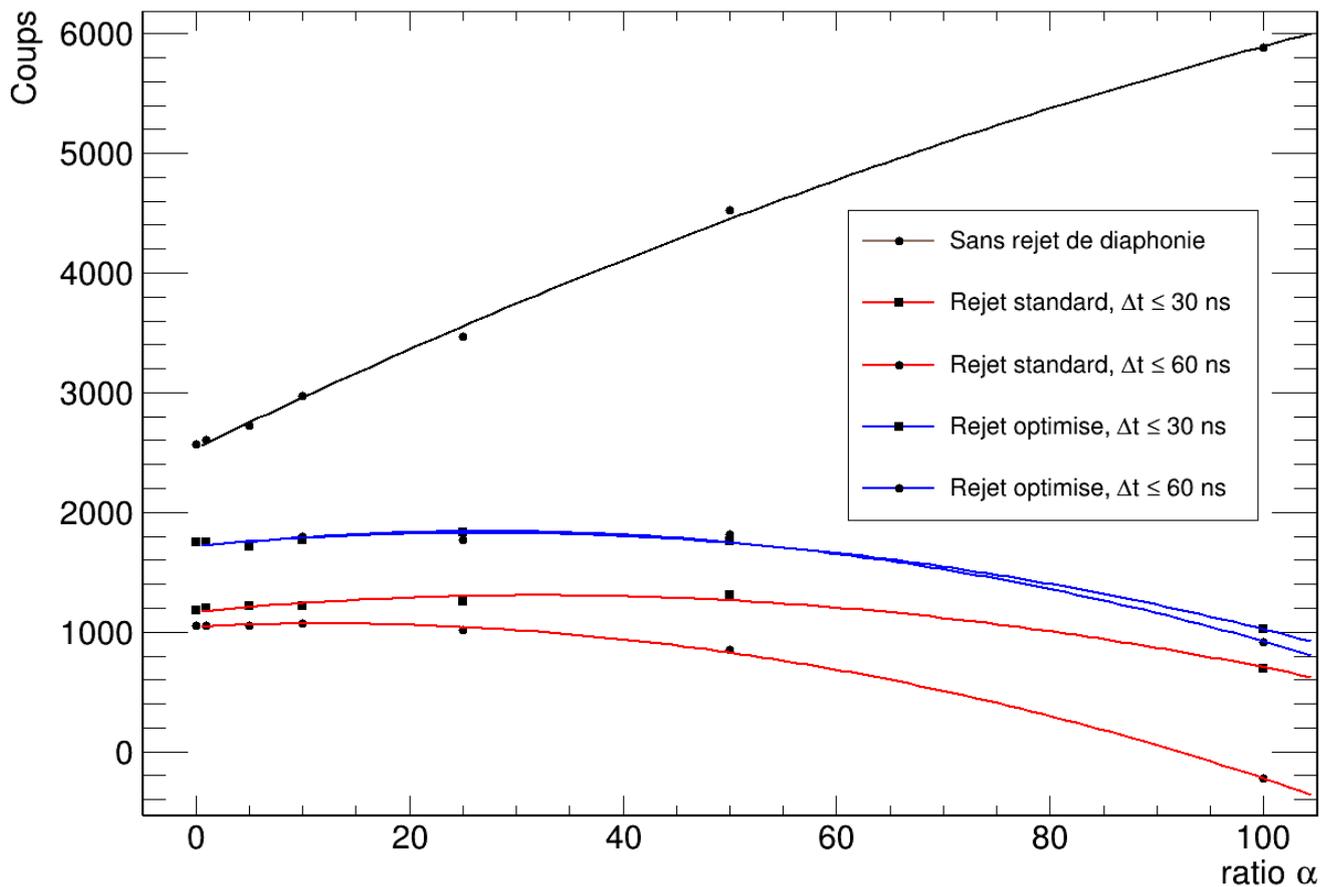


Figure 86. Correction des accidentelles « éloignées » sans rejet de diaphonie ou avec le rejet standard et le nouveau rejet optimisé.

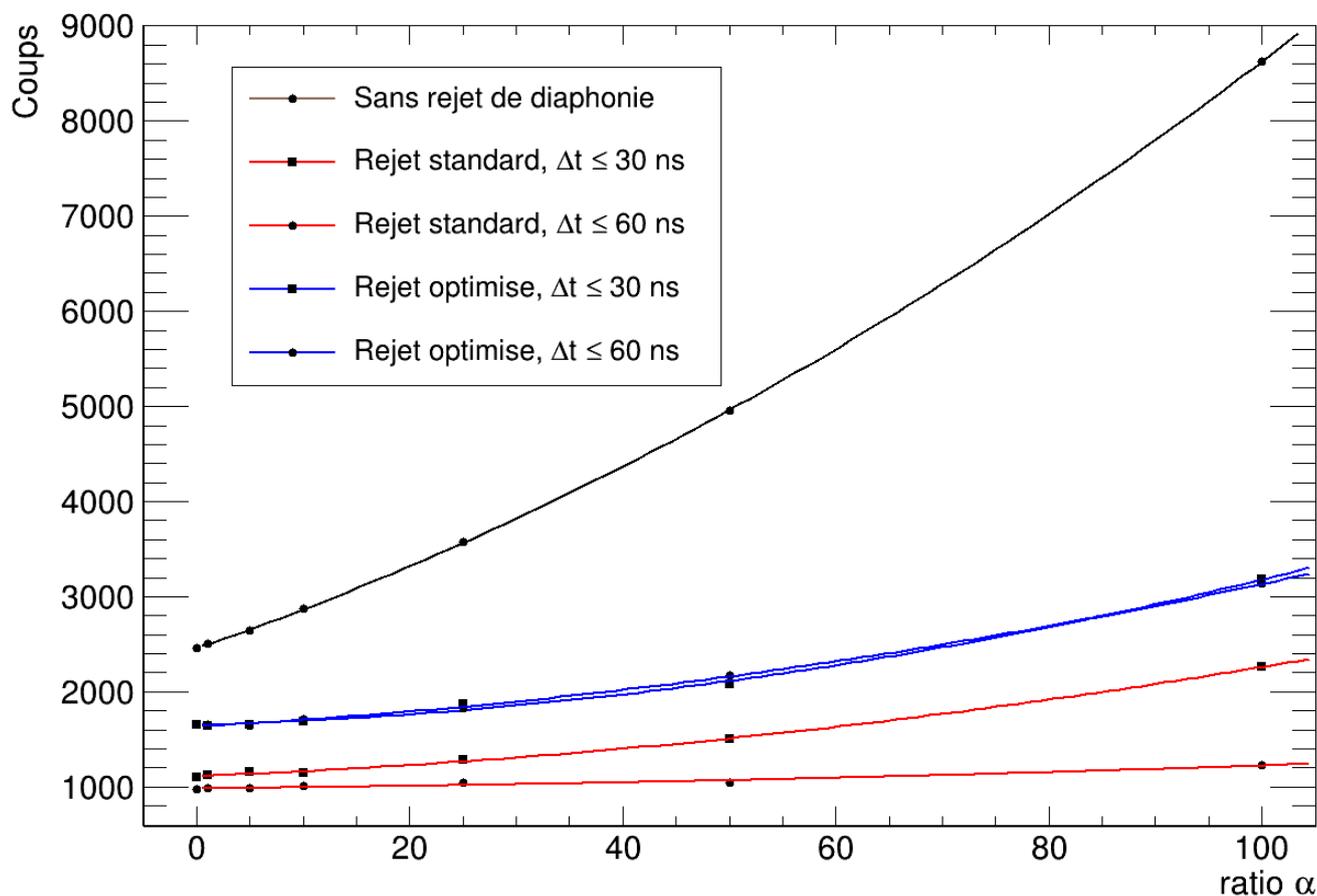


Figure 87. Correction des accidentelles « proches », sans rejet de la diaphonie ou avec le rejet standard et le nouveau rejet optimisé.

Finalement, toutes ces figures illustrent l'intérêt de détecter la présence d'un ratio alpha élevé lors des mesures. Par exemple, des ratios de comptages entre singulets, doublets et triplets pourrait apporter une information sur le ratio alpha. Plus globalement, il faudra développer des corrections de la contribution des sources parasites (α, n) dans la ROI, d'une part, et des effets de paliers à fort taux de comptage, d'autre part.

3.5.3 Réglages optimaux en fonction du taux de comptage total et du ratio alpha

Les paragraphes précédents ont permis d'appréhender les effets des forts ratios alpha et des taux de comptage élevés sur l'extraction du signal utile des fissions spontanées avec la nouvelle méthode des histogrammes 2D étudiée dans le cadre de cette thèse. Nous reprenons ici les enseignements les plus importants pour la suite des travaux, selon les caractéristiques des fûts de déchets, avec le rejet optimisé de la diaphonie qui vient d'être présenté.

1. Pour la grande majorité des colis de déchets réels, le ratio alpha est inférieur à 10 (oxyde de plutonium) et le taux de comptage total attendu est de quelques 10^4 s^{-1} (émissions neutroniques et gamma du plutonium et de l'américium, pas de sources gamma de type produits de fission ou d'activation). Il est alors préférable d'utiliser les fenêtres de coïncidence dites « éloignées » (i.e. longtemps après la fenêtre (R+A) dans la méthode classique des registres à décalage, par rapport au temps de détection moyen des particules, voir Chapitre 1) de façon à ce qu'elles n'intègrent pas de coïncidences réelles de fission spontanée. Le rejet de la diaphonie s'applique sur 30 ns, ce qui permet d'écarter la majeure partie de la diaphonie de diffusion neutronique, laquelle transforme des paires γn parasites de réaction (α, n) en coïncidences réelles parasites de type $\gamma n n$, très pénalisantes car présentes dans la région d'intérêt du signal utile.
2. Pour des forts taux de comptage total ($> 10^5 \text{ s}^{-1}$) mais un ratio alpha inférieur à 10, les effets de palier liés à l'intégration de charge commencent à devenir significatifs et il est préférable d'utiliser la correction avec les accidentelles « proches ». On applique le nouvel algorithme de rejet de diaphonie sur 30 ns évoqué au paragraphe précédent.
3. Pour les ratios alpha supérieurs à 10 avec un taux de comptage total inférieur à 10^5 s^{-1} , la correction des accidentelles « éloignées » est préférable car le palier d'intégration de charge est négligeable. Le rejet de la diaphonie pendant 30 ns, crucial à fort ratio alpha, est appliqué.
4. Pour le cas critique d'un ratio alpha et d'un taux de comptage élevés (respectivement plus de 10 et 10^5 s^{-1}), la correction des accidentelles proches sera utilisée avec le rejet de la diaphonie pendant 30 ns.

Pour les cas 2 à 4 (faible proportion des colis réels), il semble possible de corriger à terme les effets de palier dans la soustraction des coïncidences accidentelles à fort taux de comptage, par exemple en introduisant des facteurs correctifs fonction de l'amplitude des discontinuités observées, et de détecter les ratios alpha élevés susceptibles de conduire à une forte surestimation de la masse de plutonium, par exemple avec des ratios entre singulets, doublets et triplets.

3.6 PERFORMANCES AVEC LA CONFIGURATION OPTIMALE

3.6.1 Résultats expérimentaux avec l'écran de plomb et la matrice métallique

Des mesures sont effectuées avec l'écran de plomb de 5 cm autour du fût de déchets (cf. Figure 49) et les traitements de données présentés dans le §3.5 précédent. Seuls les résultats pour les comptages des ROI corrigées par les accidentelles proches et éloignées avec un rejet optimal de la diaphonie sur 30 ns sont donnés, ainsi que les taux de singulets comme estimation du taux de comptage total. Les tableaux complets avec les taux de doublets et triplets sont disponibles en Annexe 8. L'objectif est toujours de vérifier si le signal net mesuré avec la seule source de ^{252}Cf (ou les plaquettes de plutonium) reste extractible avec les différentes sources perturbatrices (AmBe, ^{60}Co et ^{137}Cs).

Le premier cas considéré est celui, le plus favorable, présentant un ratio alpha de 1,2. Les résultats obtenus avec rejet de diaphonie sont présentés dans le Tableau 58. Avec la méthode graphique de l'histogramme 2D et la soustraction des accidentelles « proches » (avant les paliers dus à l'intégration de la charge), les résultats sont très bons avec des surestimations maximales de l'ordre de 2 % sur l'ensemble des configurations de sources. Avec la soustraction des accidentelles éloignées, l'écart après ajout de la source AmBe est encore moindre, mais des sous estimations de l'ordre de 2% apparaissent avec l'ajout des sources de rayonnements gamma. Effectivement, ces sources engendrent un taux de comptage supérieur à $2 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$ et on pourrait envisager d'utiliser la méthode des accidentelles proches (cf. §3.5.3).

Tableau 58. Comptages dans les ROI des histogrammes, pour 30 min de mesure, corrigés par les accidentelles proches ou éloignées, pour différentes sources au centre de la matrice métallique avec le plomb, un ratio alpha de 1,2 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.

$\alpha = 1,2$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}3)$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}3) + \text{AmBe}$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}3) + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co}$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}3) + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co} + ^{137}\text{Cs}$
S (en s⁻¹)	5,60.10⁴	1,28.10⁵	2,42.10⁵	2,61.10⁵
Rejet de diaphonie avec $\Delta t \leq 30$ ns				
ROI corrigée (A_{proches})	(4,40 ± 0,01).10 ⁵ (2,45 ± 0,01).10 ² s ⁻¹	(4,48 ± 0,01).10 ⁵ (2,49 ± 0,01).10 ² s ⁻¹	(4,49 ± 0,02).10 ⁵ (2,49 ± 0,01).10 ² s ⁻¹	(4,48 ± 0,02).10 ⁵ (2,49 ± 0,01).10 ² s ⁻¹
ROI corrigée (A_{éloignées})	(4,42 ± 0,01).10 ⁵ (2,45 ± 0,01).10 ² s ⁻¹	(4,44 ± 0,01).10 ⁵ (2,46 ± 0,01).10 ² s ⁻¹	(4,36 ± 0,02).10 ⁵ (2,42 ± 0,01).10 ² s ⁻¹	(4,33 ± 0,02).10 ⁵ (2,40 ± 0,01).10 ² s ⁻¹

Le Tableau 59 présente les résultats pour une source de ^{252}Cf d'activité intermédiaire (n°2), soit un ratio alpha un peu plus pénalisant avec la même source AmBe ($\alpha=12$). La méthode graphique de l'histogramme temporel se montre efficace, avec des surestimations de 15 à 25% en utilisant la correction des accidentelles proches. S'agissant d'une surestimation, ce biais reste acceptable pour une application industrielle car il va dans le sens de la sûreté. Avec la méthode des accidentelles éloignées, la surestimation du signal net est même un peu moins importante (15% maximum) car l'effet de sous-estimation dû au palier d'intégration de charge commence à devenir notable à taux de comptage supérieur à 10⁵ s⁻¹.

Tableau 59. Comptages dans les ROI des histogrammes, pour 30 min de mesure, corrigés par les accidentelles proches ou éloignées, pour différentes sources au centre de la matrice métallique avec le plomb, un ratio alpha de 12 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.

$\alpha = 12$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2)$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2) + \text{AmBe}$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2) + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co}$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2) + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co} + ^{137}\text{Cs}$
S (en s⁻¹)	5,53.10³	8,06.10⁴	1,74.10⁵	1,87.10⁵
Rejet de diaphonie avec $\Delta t \leq 30$ ns				
ROI corrigée (A_{proches})	(4,36 ± 0,03).10 ⁴ (2,42 ± 0,02).10 ¹ s ⁻¹	(5,14 ± 0,05).10 ⁴ (28,5 ± 0,277) s ⁻¹	(5,34 ± 0,07).10 ⁴ (29,6 ± 0,397) s ⁻¹	(5,30 ± 0,07).10 ⁴ (29,4 ± 0,415) s ⁻¹
ROI corrigée (A_{éloignées})	(4,42 ± 0,03).10 ⁴ (2,45 ± 0,02).10 ¹ s ⁻¹	(5,01 ± 0,05).10 ⁴ (2,78 ± 0,03).10 ¹ s ⁻¹	(4,99 ± 0,07).10 ⁴ (2,77 ± 0,04).10 ¹ s ⁻¹	(4,98 ± 0,08).10 ⁴ (2,77 ± 0,04).10 ¹ s ⁻¹

Le Tableau 60 présente les résultats dans le cadre de la source de ^{252}Cf la moins active à disposition au laboratoire, qui conduit à un ratio alpha de 59 avec la source AmBe. Pour cette série de mesures, la source de ^{137}Cs n'a pas été utilisée car non disponible, mais la surestimation par rapport au signal utile de la source de ^{252}Cf seule est déjà rédhibitoire dès l'ajout des sources d'AmBe et de ^{60}Co . Il est donc impossible d'utiliser la méthode en l'état et il faudra a minima trouver un moyen de détecter un tel niveau de ratio alpha, peu fréquent en pratique mais pouvant conduire à une forte surestimation de la masse de plutonium.

Tableau 60. Comptages dans les ROI des histogrammes, pour 30 min de mesure, corrigés par les accidentelles proches ou éloignées, pour différentes sources au centre de la matrice métallique avec le plomb, un ratio alpha de 59 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.

$\alpha = 59$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2)$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2) + \text{AmBe}$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2) + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co}$
S (en s⁻¹)	(6,57 ± 0,04).10²	(7,30 ± 0,01).10⁴	1,88.10⁵
Rejet de diaphonie avec $\Delta t \leq 30$ ns			
ROI corrigée (A_{proches})	(4,62 ± 0,14).10 ³ 2,57 ± 0,08 s ⁻¹	(1,19 ± 0,04).10 ⁴ 6,60 ± 0,20 s ⁻¹	(1,29 ± 0,06).10 ⁴ 7,18 ± 0,35 s ⁻¹
ROI corrigée (A_{éloignées})	(4,63 ± 0,13).10 ³ 2,57 ± 0,08 s ⁻¹	(1,11 ± 0,03).10 ⁴ 6,15 ± 0,19 s ⁻¹	(1,04 ± 0,06).10 ⁴ 5,80 ± 0,36 s ⁻¹

Le Tableau 61 présente enfin les résultats obtenus avec les plaquettes de plutonium, dont la multiplicité neutronique moyenne par fission est nettement inférieure à celle du ^{252}Cf (2,16 pour le ^{240}Pu vs. 3,76 pour le ^{252}Cf) et qui présentent le ratio alpha le plus pénalisant ($\alpha = 72$). On observe ici aussi une surestimation importante du signal net dès l'ajout de l'AmBe.

Tableau 61. Comptages dans les ROI des histogrammes, pour 30 min de mesure, corrigés par les accidentelles proches ou éloignées, pour différentes sources au centre de la matrice métallique avec le plomb, un ratio alpha de 72 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.

$\alpha = 72$	Plutonium (4 plaquettes)	Pu + AmBe	Pu + AmBe + ^{60}Co	Pu + AmBe + ^{60}Co + ^{137}Cs
S (en s⁻¹)	$2,04 \cdot 10^3$	$7,40 \cdot 10^4$	$1,76 \cdot 10^5$	$1,94 \cdot 10^5$
Rejet de diaphonie pour $\Delta t \leq 30$ ns				
ROI corrigée (A_{proches})	$(5,74 \pm 0,03) \cdot 10^3$ $3,19 \pm 0,01 \text{ s}^{-1}$	$(1,40 \pm 0,03) \cdot 10^4$ $7,78 \pm 0,19 \text{ s}^{-1}$	$(1,47 \pm 0,06) \cdot 10^4$ $8,16 \pm 0,32 \text{ s}^{-1}$	$(1,51 \pm 0,06) \cdot 10^4$ $8,38 \pm 0,35 \text{ s}^{-1}$
ROI corrigée (A_{éloignées})	$5,77 \cdot 10^3 \pm 24,8$ $3,20 \pm 0,01 \text{ s}^{-1}$	$(1,31 \pm 0,03) \cdot 10^4$ $7,29 \pm 0,18 \text{ s}^{-1}$	$(1,25 \pm 0,06) \cdot 10^4$ $6,96 \pm 0,33 \text{ s}^{-1}$	$(1,24 \pm 0,07) \cdot 10^4$ $6,90 \pm 0,36 \text{ s}^{-1}$

La Figure 88 résume les surestimations du signal net en fonction des 4 ratios alpha testés et pour le rejet optimisé de diaphonie sur 30 ns, uniquement avec les sources neutroniques (^{252}Cf ou Pu, AmBe) pour rester dans une gamme de taux de comptage représentative de la plupart des colis réels (environ 10^5 s^{-1} pour le taux de comptage maximal avec la source de ^{252}Cf la plus active et l'AmBe, voir Tableau 58). Dans ce cas, nous pouvons appliquer le rejet des accidentelles « éloignées » comme indiqué au §2.4.3. En pratique, pour un ratio alpha inférieur à 10 et un taux de comptage inférieur à 10^5 s^{-1} (limites arbitraires pour fixer les idées), soit la grande majorité des colis de déchets radioactifs plutonifères [Orano], la surestimation de la masse de plutonium reste inférieure à 20%.

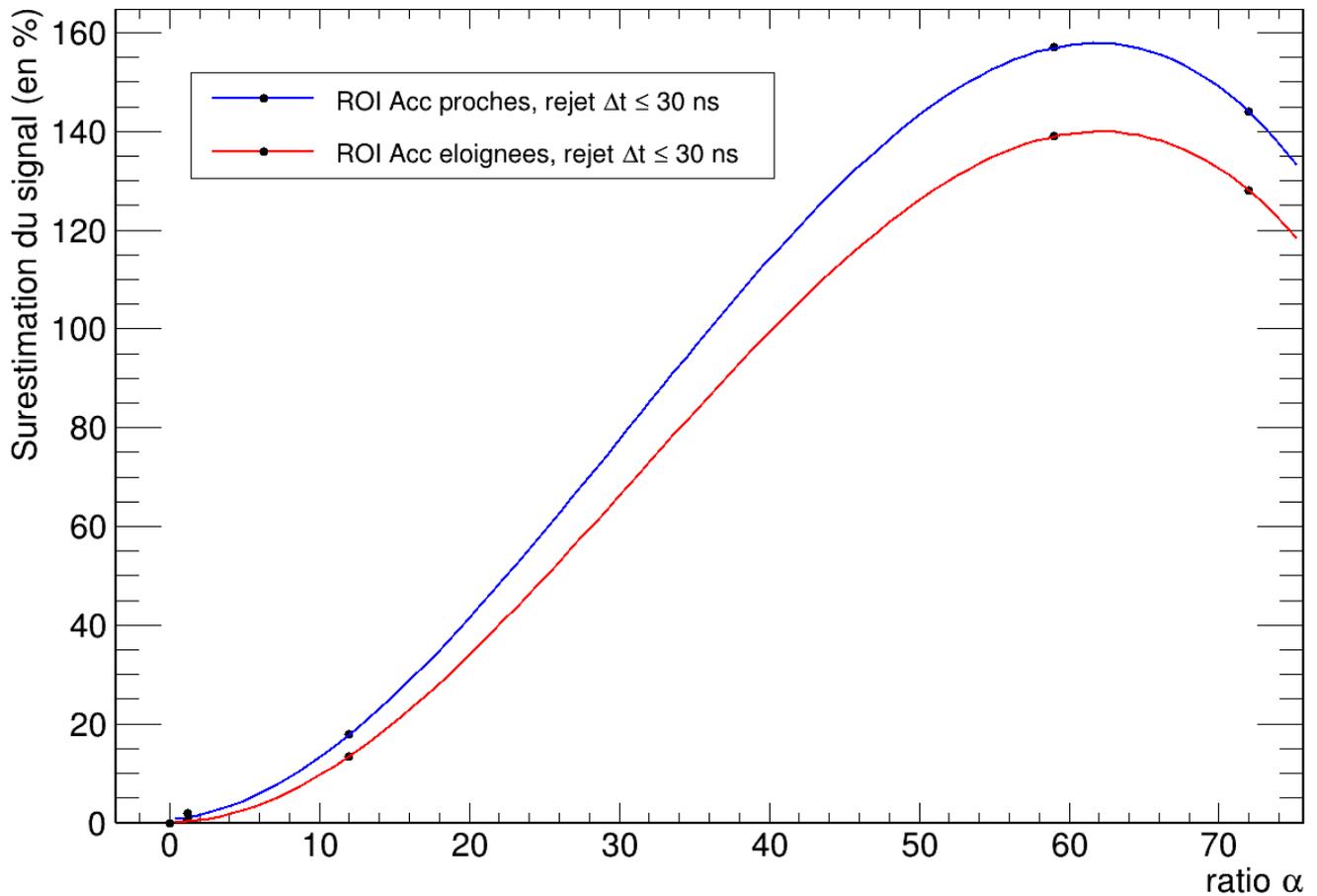


Figure 88. Surestimation du signal utile en fonction du ratio alpha, en présence des sources neutroniques seules (^{252}Cf ou ^{240}Pu + AmBe) pour la matrice métallique.

3.6.2 Résultats expérimentaux avec l'écran de plomb et la matrice organique

Le Tableau 62 présente les résultats obtenus pour les différentes configurations de mesure avec la matrice organique, avec rejet de diaphonie sur 30 ns. Les comptages restent stables malgré l'ajout des sources parasites, comme précédemment avec la matrice métallique, pour ce ratio alpha typique des mesures de fûts de déchets contaminés en oxyde de plutonium. La surestimation maximale est de 5% pour les comptages des ROI. De la même manière qu'avec la matrice métallique, les accidentelles éloignées permettent de plus faibles surestimations (moins de 1 % ici).

Tableau 62. Comptages dans les ROI des histogrammes, pour 30 min de mesure, corrigés par les accidentelles proches ou éloignées, pour différentes sources au centre de la matrice organique avec le plomb, un ratio alpha de 1,2 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.

$\alpha = 1,2$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2)$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2) + \text{AmBe}$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2) + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co}$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2) + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co} + ^{137}\text{Cs}$
S (en s⁻¹)	4,36.10⁴	1,03.10⁵	2,09.10⁵	2,23.10⁵
rejet de diaphonie optimisé, $\Delta t \leq 30$ ns				
ROI corrigée (A_{proches})	(1,03 ± 0,01).10 ⁵ (5,73 ± 0,01).10 ¹ s ⁻¹	(1,06 ± 0,01).10 ⁵ (5,90 ± 0,01).10 ¹ s ⁻¹	(1,07 ± 0,01).10 ⁵ (5,96 ± 0,01).10 ¹ s ⁻¹	(1,08 ± 0,01).10 ⁵ (5,99 ± 0,01).10 ¹ s ⁻¹
ROI corrigée (A_{éloignées})	(1,03 ± 0,01).10 ⁵ (5,71 ± 0,01).10 ¹ s ⁻¹	(1,04 ± 0,01).10 ⁵ (5,78 ± 0,01).10 ¹ s ⁻¹	(1,01 ± 0,01).10 ⁵ (5,63 ± 0,01).10 ¹ s ⁻¹	(1,02 ± 0,01).10 ⁵ (5,64 ± 0,01).10 ¹ s ⁻¹

Le Tableau 63 présente les résultats pour le ratio alpha de 12. Avec la correction des coïncidences accidentelles « proches », les comptages des ROI sont surestimés de 50% par rapport à la mesure de la source de ²⁵²Cf seule, soit des écarts un peu plus importants qu'avec la matrice métallique (la surestimation était de 20% environ, cf. Tableau 59) qui s'expliquent par le fait que l'efficacité de détection neutronique diminue d'un facteur 2 à 3 avec la matrice organique par rapport à la matrice métallique (voir Tableau 30) et qu'il y a donc moins de signal utile. La surestimation pour ce ratio alpha reste néanmoins du même ordre de grandeur que les incertitudes liées aux effets de localisation dans les différentes matrices (§3.3). Comme précédemment, avec la correction des accidentelles « éloignées », on observe un effet de compensation entre les biais de surestimation (rejet insuffisant de la diaphonie neutronique et donc des coïncidences parasites à ratio alpha élevé) et de sous-estimation (paliers à taux de comptage supérieur à 10⁵ s⁻¹).

Tableau 63. Comptages dans les ROI des histogrammes, pour 30 min de mesure, corrigés par les accidentelles proches ou éloignées, pour différentes sources au centre de la matrice organique avec le plomb, un ratio alpha de 12 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.

$\alpha = 12$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2)$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2) + \text{AmBe}$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2) + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co}$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2) + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co} + ^{137}\text{Cs}$
S (en s⁻¹)	4,23.10³	6,43.10⁴	1,73.10⁵	1,88.10⁵
rejet de diaphonie, $\Delta t \leq 30$ ns				
ROI corrigée (A_{proches})	(9,58 ± 0,16).10 ³ 5,32 ± 0,09 s ⁻¹	(1,40 ± 0,03).10 ⁴ 7,80 ± 0,17 s ⁻¹	(1,48 ± 0,06).10 ⁴ 8,23 ± 0,31 s ⁻¹	(1,55 ± 0,06).10 ⁴ 8,62 ± 0,33 s ⁻¹
ROI corrigée (A_{éloignées})	(9,65 ± 0,15).10 ³ 5,36 ± 0,09 s ⁻¹	(1,35 ± 0,03).10 ⁴ 7,51 ± 0,18 s ⁻¹	(1,29 ± 0,06).10 ⁴ 7,19 ± 0,33 s ⁻¹	(1,34 ± 0,06).10 ⁴ 7,47 ± 0,35 s ⁻¹

Le Tableau 64 présente le cas encore plus pénalisant (mais rare en pratique) correspondant à un ratio alpha de 59. La surestimation du signal net avec la correction des accidentelles « proches » devient très importante, celle avec les accidentelles éloignées conduit à nouveau à une compensation entre les deux biais.

Tableau 64. Comptages dans les ROI des histogrammes, pour 30 min de mesure, corrigés par les accidentelles proches ou éloignées, pour différentes sources au centre de la matrice organique avec le plomb, un ratio alpha de 59 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.

$\alpha = 59$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2)$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2) + \text{AmBe}$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2) + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co}$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2) + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co} + ^{137}\text{Cs}$
S (en s⁻¹)	(4,72 ± 0,04).10²	6,10.10⁴	1,70.10⁵	1,84.10⁵
rejet de diaphonie, $\Delta t \leq 30$ ns				
ROI corrigée (A_{proches})	(4,86 ± 0,99).10 ² (2,70 ± 0,55).10 ⁻¹ s ⁻¹	(4,92 ± 0,26).10 ³ 2,73 ± 0,14 s ⁻¹	(6,24 ± 0,51).10 ³ 3,47 ± 0,28 s ⁻¹	(6,55 ± 0,55).10 ³ 3,64 ± 0,30 s ⁻¹
ROI corrigée (A_{éloignées})	(5,40 ± 1,00).10 ² (3,00 ± 0,56).10 ⁻¹ s ⁻¹	(4,46 ± 0,27).10 ³ 2,48 ± 0,15 s ⁻¹	(4,57 ± 0,54).10 ³ 2,54 ± 0,30 s ⁻¹	(4,52 ± 0,58).10 ³ 2,51 ± 0,32 s ⁻¹

A titre purement indicatif, le Tableau 65 donne les résultats pour le ratio alpha de 72, le plus défavorable, obtenu avec les plaquettes de plutonium. Avec une masse équivalente de ²⁴⁰Pu similaire à celle de la source ²⁵²Cf précédente (3 g contre 5 g approximativement), les résultats sont comparables.

Tableau 65. Comptages dans les ROI des histogrammes, pour 30 min de mesure, corrigés par les accidentelles proches ou éloignées, pour différentes sources au centre de la matrice organique avec le plomb, un ratio alpha de 72 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.

$\alpha = 72$	Plutonium (4 plaquettes)	Pu + AmBe	Pu + AmBe + ^{60}Co	Pu + AmBe + ^{60}Co + ^{137}Cs
S (en s⁻¹)	$(1,84 \pm 0,04) \cdot 10^3$	$6,15 \cdot 10^4$	$1,67 \cdot 10^5$	$1,82 \cdot 10^5$
rejet de diaphonie, $\Delta t \leq 30$ ns				
ROI corrigée (A_{proches})	$(8,85 \pm 1,02) \cdot 10^2$ $(4,92 \pm 0,57) \cdot 10^{-1} \text{ s}^{-1}$	$(5,34 \pm 0,26) \cdot 10^3$ $2,97 \pm 0,14 \text{ s}^{-1}$	$(6,90 \pm 0,51) \cdot 10^3$ $3,84 \pm 0,28 \text{ s}^{-1}$	$(6,32 \pm 0,54) \cdot 10^3$ $3,51 \pm 0,30 \text{ s}^{-1}$
ROI corrigée (A_{éloignées})	$9,25 \cdot 10^2 \pm 101$ $(5,14 \pm 0,56) \cdot 10^{-1} \text{ s}^{-1}$	$(4,90 \pm 0,27) \cdot 10^3$ $2,72 \pm 0,15 \text{ s}^{-1}$	$(5,49 \pm 0,53) \cdot 10^3$ $3,05 \pm 0,30 \text{ s}^{-1}$	$(4,88 \pm 0,57) \cdot 10^3$ $2,71 \pm 0,32 \text{ s}^{-1}$

La Figure 89 résume les surestimations du signal net en fonction des 4 ratios alpha testés par la mesure pour les sources neutroniques seules (^{252}Cf ou Pu, AmBe), avec la correction des accidentelles proches ou éloignées. La méthode des histogrammes 2D semble, comme pour la matrice métallique, utilisable jusqu'au ratio alpha de 12 avec ici une surestimation du signal utile ne dépassant pas 50%. Les méthodes de correction des accidentelles proches ou éloignées sont équivalentes à faible ratio alpha. La méthode de correction par les accidentelles éloignées se montre un peu moins pénalisante aux ratios alpha élevés, mais de toute façon la surestimation du signal net est rédhitoire quelle que soit l'approche de soustraction. La surestimation moins importante avec les plaquettes de plutonium (ratio alpha de 72) qu'avec la source de ^{252}Cf la moins active (ratio alpha de 59) pourrait venir de leurs très faibles signaux utiles, entraînant une grande incertitude sur les signaux nets après soustraction du bruit de fond, mesuré à une date différente et susceptible d'avoir varié significativement (voir §2.4). Il est donc difficile d'interpréter cette tendance et une recommandation essentielle sera de mesurer le bruit de fond avant et/ou après chaque mesure de colis réel, en vue de soustraire une valeur représentative, ainsi que filtrer les événements de multiplicité élevée (dus aux rayonnements cosmiques) dans les données mesurées.

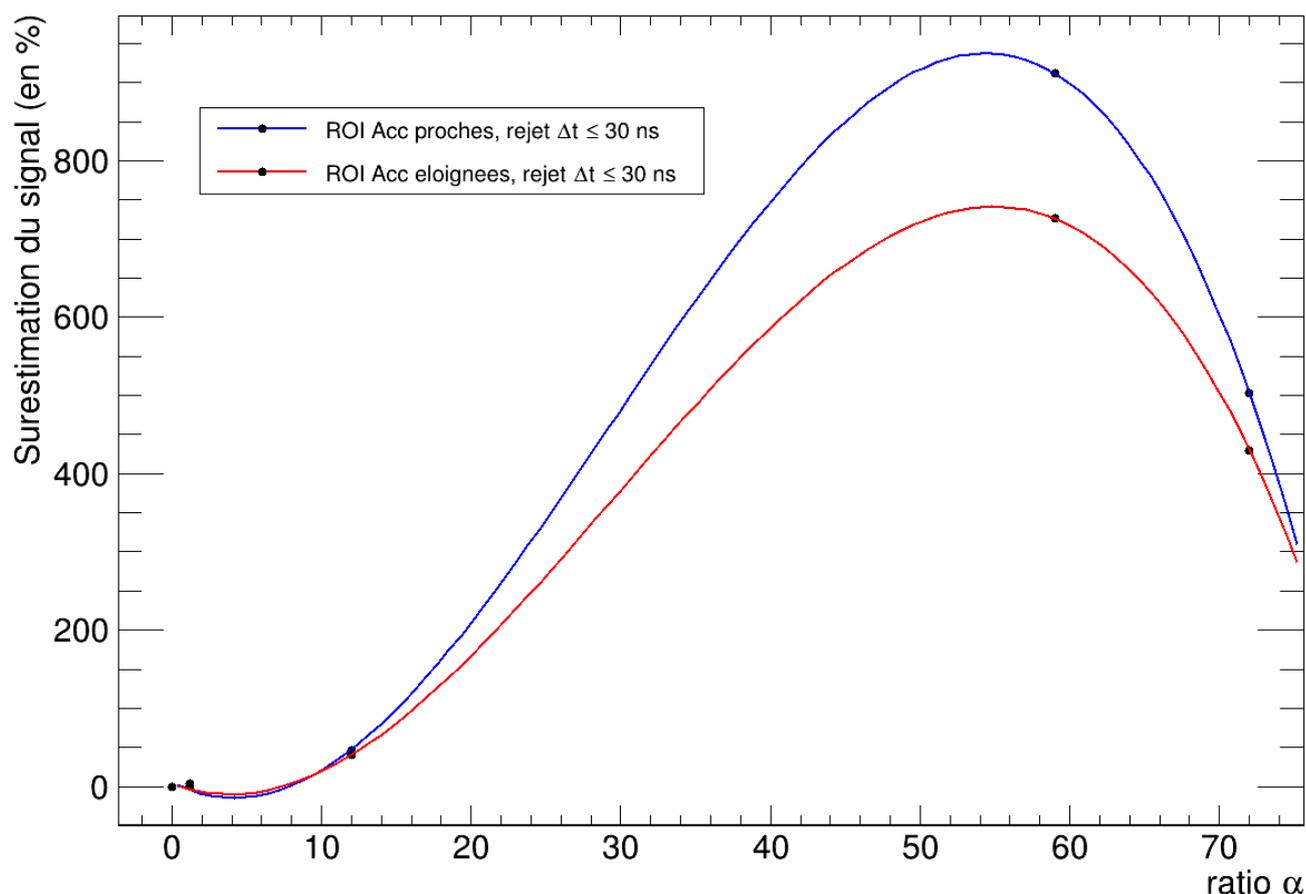


Figure 89. Surestimation du signal utile en fonction du ratio alpha, en présence des sources neutroniques seules (^{252}Cf ou ^{240}Pu + AmBe) pour la matrice organique.

La méthode de la sélection temporelle dans les histogrammes 2D est donc fonctionnelle jusqu'à un ratio alpha de l'ordre de 10, qui englobe une grande majorité des fûts de déchets plutonifères réels [Orano]. Au-delà, la surestimation de la masse de plutonium est trop importante et il sera nécessaire d'étudier une méthode de détection des ratios alpha élevés, par exemple en exploitant des ratios entre singulets, doublets et triplets, ou bien entre les

ordres de multiplicité (par exemple, S/D, D/T, M1/M2, M2/M3, etc.), comme indicateurs du ratio alpha. Il serait alors possible d'émettre un avertissement sur le risque d'une surestimation importante de la masse de ^{240}Pu équivalente en cas de ratio alpha supérieur à un seuil à définir, selon le degré de surestimation acceptable.

3.6.3 Limites de détection

La limite de détection (LD) du système (et de la méthode) de mesure est estimée pour les différents bruits de fond (BDF) mentionnés au §2.4, car le BDF peut varier significativement d'une mesure à l'autre.

La LD est estimée en première approximation de la manière suivante à partir de la mesure du bruit de fond [Vivier2010], pour des risques alpha (fausse alarme) et bêta (non détection) de 2.5 % chacun :

$$LD_{coups} = 4\sqrt{BDF_{coups.s^{-1}} \cdot t} \quad (45)$$

où BDF_{coups} correspond au comptage des triplets ou de la ROI durant un temps de mesure t (ici 30 min).

Sa conversion en grammes de ^{240}Pu équivalent est obtenue par :

$$LD_{grammes} = \frac{4\sqrt{BDF_{coups.s^{-1}} \cdot t}}{CE_{(coups.g^{-1})} \cdot t} = \frac{4\sqrt{BDF_{coups.s^{-1}}}}{CE_{(coups.g^{-1})} \cdot \sqrt{t}} \quad (46)$$

où CE est le coefficient d'étalonnage exprimé en coups par seconde pour 1 g de ^{240}Pu équivalent. Cette formulation de la LD permet de faire apparaître sa dépendance en $1/\sqrt{t}$, à taux de comptage du BDF et CE constants. Le coefficient CE pour les plaquettes de plutonium dans la matrice métallique ou organique est calculé d'après les résultats des §3.6.1 et 3.6.2, respectivement, voir Tableau 66.

La LD est de l'ordre de 0.1 g en moyenne pour la matrice métallique et 0.6 g pour la matrice organique, ce qui ne donne que peu de marge quant aux futures applications industrielles car de nombreux fûts de déchets technologiques, comme ceux produits par les usines de Melox, La Hague ou Cadarache, comportent des contaminations de l'ordre du gramme de plutonium [Orano]. Cependant, la LD est ici calculée pour des mesures de 30 min et des acquisitions plus longues sont envisageables. L'équation (46) indique qu'augmenter le temps de mesure d'un facteur 4 permettrait, par exemple, de réduire la LD d'un facteur 2. Par ailleurs, un système industriel avec des détecteurs au-dessus et en dessous du fût à mesurer permettrait d'améliorer l'efficacité de détection, donc le coefficient d'étalonnage CE et par suite la LD. Le gain sur la LD est difficile à prédire car si l'effet sur CE peut s'estimer par simulation, le bruit de fond dans les multiplicités d'ordre élevé avec davantage de détecteurs doit être mesuré expérimentalement. Un blindage externe pourrait aussi être envisagé pour protéger les détecteurs, ou un veto cosmique, ou encore un algorithme de filtrage des événements de bruit de fond de multiplicité élevée (gerbes d'événements en coïncidence dues aux rayonnements cosmiques, voir §2.4), qui semble être la meilleure solution pour limiter ce type de bruit de fond sans trop alourdir ou compliquer le système de mesure.

L'Annexe 9 présente par ailleurs une estimation complémentaire de la LD avec les coefficients d'étalonnages calculés pour une répartition homogène du contaminant dans la matrice (à partir des mesures de la source de ^{252}Cf en 9 positions au §3.3), avec des valeurs de LD logiquement un peu plus basses pour cette distribution qu'avec la source au centre.

Tableau 66. Limites de détection en 30 min de mesure pour les plaquettes de plutonium (exprimées en gramme de $^{240}\text{Pu}^{eq}$) au centre des matrices métallique et organique (rejet de diaphonie sur 30 ns).

			
	Bruit de fond (24/02/21)	Bruit de fond (29/03/21)	Bruit de fond (09/03/21)
Triplets (10-30 ; 140-160 ns)	6 372 ± 819	2 235 ± 163	6 276 ± 854
Comptage ROI (Correction accidentelles « proches »)	2 547 ± 61	985 ± 39	3 079 ± 72
LD Triplets (coups _{30min})	319 ± 21	189 ± 7	317 ± 22
LD ROI (coups _{30min})	202 ± 2	126 ± 2	222 ± 3
Coefficient d'étalonnage, Pu, Triplets (en coups _{30min} ·g _{240Pu^{eq}} ⁻¹)		2 980 ± 32	534 ± 14
LD Triplets, Pu au centre, en g	0,107 ± 0,008	0,0634 ± 0,003	0,594 ± 0,057
Coefficient d'étalonnage, Pu, ROI (en coups _{30min} ·g _{240Pu^{eq}} ⁻¹)		1 833 ± 25	283 ± 10
LD (ROI, Pu au centre, en g)	0,110 ± 0,003	0,0687 ± 0,0020	0,784 ± 0,031

CONCLUSION DU CHAPITRE 3

Dans ce chapitre, le système à 8 détecteurs des premiers essais a été complété avec 16 détecteurs au total et une nouvelle électronique d'acquisition, FASTER, a été implémentée pour limiter les pertes de données à fort taux de comptage. Un fût maquette de 118 litres ($h = 72$ cm et $r = 23$ cm) a été rempli successivement avec une matrice organique ou métallique, pour représenter des déchets technologiques aux propriétés d'atténuation neutroniques et gamma différentes. Une ceinture de plomb de 5 cm a aussi été mise en place pour limiter l'impact des rayonnements gamma ainsi que le taux de comptage ($3 \cdot 10^6$ contre $2,5 \cdot 10^5$ s⁻¹ sans et avec le plomb, lorsque les 4 sources les plus actives sont présentes).

Le bruit de fond de la casemate BIHAN a été caractérisé, montrant des variations significatives dans le temps, notamment au nouveau des coïncidences de multiplicités élevées induites par les muons cosmiques, qui génèrent par spallation des gerbes d'impulsions en interagissant, notamment, avec l'écran en plomb. Des variations d'un facteur 2 sur le taux des doublets et d'un facteur 3 sur celui des triplets du bruit de fond ont ainsi été observées à un mois d'intervalle pour la configuration avec la matrice métallique et l'écran de plomb. Le bruit de fond nécessitera donc des mesures périodiques, dans l'idéal avant et après chaque caractérisation d'un colis de déchets radioactifs réel. Les événements de multiplicité supérieure à 4 étant très majoritairement dus aux spallations, leur filtrage dans les données brutes est envisageable avant toutes les autres étapes d'analyse. Si cette mesure simple s'avérait insuffisante, un blindage extérieur des détecteurs ou un veto cosmique pourraient aussi contribuer à limiter ce bruit de fond cosmique pénalisant pour les mesures de coïncidences. Des mesures dans la casemate DANAIDES, qui dispose d'une dalle de béton très épaisse au plafond (alors que BIHAN n'a pas de plafond), pourraient être réalisées dans cette optique.

Les simulations avec le nouveau dispositif et le fût maquette rempli de fer ou de bois présentent logiquement des écarts plus importants qu'au Chapitre 2 avec des sources nues et sans écran de plomb devant les détecteurs. Les principales incertitudes identifiées sont liées à la densité apparente et à l'homogénéité imparfaite des matrices, au positionnement des sources, à la densité apparente de la ceinture de plomb (petits jours entre les briques), à la géométrie des plaquettes de plutonium, à la statistique de mesure pour les ordres élevés de coïncidence, aux incertitudes sur les données nucléaires utilisées dans les simulations du transport neutronique et gamma, à la précision sur l'énergie du seuil de coupure bas électronique. Compte tenu de ces incertitudes, la simulation permet de reproduire de façon satisfaisante l'ordre de grandeur des données mesurées, pour les deux méthodes d'analyse étudiées (registres à décalage et histogrammes 2D).

Les incertitudes liées à la localisation de la contamination et à la matrice dans le fût de déchets ont été évaluées par la mesure dans le système expérimental actuel, où le fût est décentré verticalement par rapport aux compteurs (la matrice de 60 cm de haut et les scintillateurs de 100 cm reposent sur le sol). Les coefficients d'étalonnage pour une répartition homogène dans la matrices métallique (tubes creux de fer, densité apparente 0,5) et organique (cylindres de bois, densité 0,3) ont été estimés grâce à des mesures en 9 positions (3 rayons \times 3 hauteurs) d'une source de ²⁵²Cf. Le coefficient d'étalonnage est environ 2 à 3 fois plus grand pour la matrice métallique, selon que l'on effectue le comptage des triplets ou dans la ROI, car les neutrons rapides de fission sont fortement atténués par la matrice organique. Ces écarts sont gérables en pratique, en utilisant différentes matrices étalon de référence selon la nature déclarée des déchets, ou en caractérisant la matrice grâce à des mesures de transmission neutronique et gamma. L'incertitude de localisation est de 27% pour la matrice métallique et 41% pour la matrice organique avec le système expérimental dissymétrique. En centrant le fût par rapport aux détecteurs, ces incertitudes de localisation estimées par simulation se réduisent à 13 et 17%, respectivement.

La limite de détection pour 30 min de mesure est, en toute première approximation, de l'ordre de 0,1 g de ²⁴⁰Pu équivalent dans la matrice métallique, mais elle est de l'ordre de 0,6 g avec la matrice organique, ce qui offre très peu de marge par rapport à de nombreux colis réels. Une augmentation du temps de mesure (gain en \sqrt{t}) et de l'efficacité de détection (en implémentant des détecteurs au-dessus et en dessous du fût) seront nécessaires en vue d'une application industrielle. Une réduction du bruit de fond, a minima en filtrant les coïncidences d'ordre élevé dues au rayonnement cosmique, sera aussi essentielle.

Une étude expérimentale sans l'écran de plomb devant les détecteurs a été menée pour optimiser la soustraction des coïncidences accidentelles à fort taux de comptage. Une étude par simulation a aussi été réalisée sur les effets du ratio alpha et du rejet de la diaphonie au niveau du signal utile net. Ces études ont permis de mettre en évidence les paramètres les plus influents et les biais associés, d'un côté la surestimation du signal net à ratio alpha élevé, de l'autre sa sous-estimation à taux de comptage total élevé. La surestimation est due au rejet imparfait de la diaphonie neutronique, qui transforme une partie des coïncidences γn dues aux réactions (α, n) en coïncidences γnn , semblables aux coïncidences utiles de fission. La sous-estimation est due à des discontinuités dans le plateau des coïncidences accidentelles, liées à l'intégration de la charge qui crée un temps mort de l'ordre de 200 ns sur chaque voie de mesure après détection d'une impulsion, cet effet devenant significatif à fort taux de comptage où le taux d'accidentelles est élevé. Un effet similaire a aussi été observé au niveau du rejet de la diaphonie, avec une discontinuité à 30 ou 60 ns selon la fenêtre utilisée. Néanmoins, pour la grande majorité des colis de déchets technologiques plutonifères, le ratio alpha est le plus souvent proche de l'unité et n'excède pas un facteur 10. Quant

au taux de comptage, il est généralement de quelques milliers à dizaines de milliers de coups par seconde. Ceci conduirait donc à des biais de moins de 10 % d'après cette étude par simulation. Au-delà de ces limites courantes, en termes de ratio alpha et de taux de comptage, des corrections devront être apportées.

La méthode de sélection temporelle dans les histogrammes 2D a aussi été testée expérimentalement avec des sources de ^{252}Cf d'activité croissante ou les plaquettes de plutonium, en ajoutant progressivement des sources parasites d'AmBe, pour les réactions (α, n), puis de ^{60}Co et ^{137}Cs pour leurs émissions gamma, corrélées ou non. L'extraction du signal net reste possible pour les deux premiers ratios alpha étudiés, 1,2 et 12, sans engendrer de surestimation critique, i.e. moins de 20% et 50% au centre des matrices métallique et organique, respectivement. On peut à nouveau souligner que ces conditions de ratio alpha sont représentatives de la grande majorité des fûts de déchets radioactifs réels. Pour les deux autres ratios alpha étudiés, 59 et 72, la surestimation de la masse de plutonium est par contre rédhitoire. Il sera donc nécessaire d'étudier une méthode de détection de tels ratios alpha, par exemple en exploitant des rapports de nombres de coups entre singulets, doublets et triplets. Ces indicateurs permettraient de prévenir l'utilisateur d'un risque de surestimation importante de la masse de plutonium en cas de ratio alpha supérieur à un seuil à définir, selon le degré de surestimation acceptable.

Une voie d'amélioration pour pallier les difficultés liées aux ratios alpha et taux de comptage élevés consisterait à ne considérer les comptages des ROI qu'aux ordres de multiplicité M3 et plus (i.e. 4 impulsions en coïncidence au minimum) pour mieux isoler le signal utile. Cette piste nécessiterait certainement d'améliorer l'efficacité de détection du système et d'augmenter le temps de mesure pour bénéficier d'une statistique suffisante, mais elle devrait offrir des perspectives intéressantes.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE 3

- [AFNOR-60315] Norme AFNOR, Energie Nucléaire, Technologie du cycle du combustible – Déchets, Recommandations en vue de l'étalonnage d'un poste de mesure pour la détermination de caractéristiques radioactives de colis de déchets par comptage neutronique passif, NF M 60-315, Mars 2001
- [Aguayo2011] E. Aguayo, R. T. Kouzes, A. S. Ankney, J. L. Orrell, T. J. Berguson, M. D. Troy, "Cosmic Ray Interactions in Shielding Materials", PNNL-20693, July 2011
- [ANDRA2019] "Inventaire national des matières et déchets radioactifs", 2019
- [Arulchakkaravarthi2001] A. Arulchakkaravarthi, P. Santhanaraghavan, P. Ramasamy, "Crystal growth of Trans-stilbene by vertical Bridgman technique with modified growth vessels and its characterization", Journal of Crystal Growth, vol. 224, Issues 1-2, April 2001, 89-94
- [Bottau2019] V. Bottau, R. De Stefano, C. Carasco, B. Perot, C. Eleon, "Procédé de détection de radiations et système associé mettant en œuvre une discrimination des coïncidences neutrons-gamma", FR19650, 2019.
- [Bottau2020] V. Bottau, L. Tondut, P.-G. Alinei, B. Pérot, C. Eleon, C. Carasco, R. De Stefano, G. Faussier, "High Resolution Gamma Spectrometry of Plutonium Bearing Waste Drum With High-Energy Reaction-Induced Gamma Rays" IEEE Transactions on Nuclear Science, Vol. 67, No. 4 (2020) 575-584
- [Bottau2021] V. Bottau, C. Carasco, B. Perot, C. Eleon, R. De Stefano, L. Isnel, I. Tsekhanovich, "Sorting fission from parasitic coincidences of neutrons and gamma rays in plastic scintillators using particle times of flight", to be submitted to TNS IEEE (2021).
- [Bourne2016_a] M. M. Bourne, "Organic scintillators in Nonproliferation Applications With a Hybridized Double-Pulse Rejection Technique", thèse de doctorat, Université du Michigan, 2016
- [Bourne2016_b] M. M. Bourne, S. D. Clarke, N. Adamowicz, S. A. Pozzi, N. Zaitseva, L. Carman, "Neutron detection in a high-gamma field using solution-grown stilbene", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 806 (2016) 348-355
- [Brizard2021] A. Brizard, "Modélisation de spectres gamma d'actinides pour la reconnaissance de radio-isotopes par des détecteurs de faibles résolution", Rapport de stage, Laboratoire de Mesures Nucléaires, 2021.
- [Brooks1960] F. D. Brooks, R. W. Pringle, B. L. Funt, "Pulse Shape Discrimination in a Plastic Scintillator", IEEE Transactions on Nuclear Science, vol. 7, June 1960, pp 35-38
- [Budakovsky2007] S. V. Busakovsky, N. Z. Galunov, N. L. Karavaeva, J. K. Kim, Y. K. Kim, O. A. Tarasenko, E. Martynenko, "New Effective Organic Scintillators for Fast Neutron and Short-Range Radiation Detection", IEEE Transactions on Nuclear Science, vol. 54, no. 6, December 2007
- [CAEN_CoMPASS] User Manual CoMPASS, Multiparametric DAQ Software for Physics Applications, Rev 8, March 13th 2019, <https://www.caen.it/products/compass/>
- [CAEN_DT5730] DT5730 / DT5730S, 8 channel 14 bit 500 MS/s Digitizer, <https://www.caen.it/products/dt5730/>
- [CAEN_V1730] CAEN, Tools for Discovery, V1730 16/8 Channel 14 bit 500 M/s Digitizer, site internet: <https://www.caen.it/products/v1730/>, accède le 09/30/2020
- [Carasco2014] C. Carasco, B. Pérot, S. Normand, G. Sannié, "POLITRANI, a New Toolkit to Simulate Organic Scintillator Pulses", IEEE Transaction on Nuclear Science, Vol. 61, No.4, August 2014
- [Carlson2016] J. S. Carlson, P. L. Feng, "Melt-cast organic glasses as high-efficiency fast neutron scintillators", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 832 (2016) 152-157
- [Carlson2017] J. S. Carlson, P. Marleau, P. L. Feng, R. A. Zarkesh, P. L. Feng, "Taking Advantage of Disorder, Small-Molecule Organic Glasses for Radiation Detection and particle Discrimination", Journal of the American Chemical Society, 2017, 139, 9621-9626
- [Carman2013] L. Carman, N. Zaitseva, H. Paul Martinez, B. Rupert, I. Pawelczak, A. Glenn, H. Mulcahy, R. Leif, K. Lewis, S. Payne, "The effect of material purity on the optical and scintillation properties of solution-grown trans-stilbene crystals", Journal of Crystal Growth 368 (2013) 56-61

- [Cester2014] D. Cester, G. Nebbia, L. Stevanato, F. Pino, G. Viesti, "Experimental tests of the new plastic scintillator with pulse shape discrimination capabilities EJ-299-33", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 735 (2014) 202-206
- [Chichester2008] D. L. Chichester, E. H. Seabury, "Using Electronic Neutron Generators in Active Interrogation to Detect Shielded Fissionable Materials", 2008 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record.
- [Chichester2015] D. L. Chichester, S. J. Thompson, M. T. Kinlaw, J. T. Johnson, J. L. Dolan, M. Flaska, S. A. Pozzi, "Statistical estimation of the performance of a fast-neutron multiplicity system for nuclear material accountancy", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 784 (2015) 448-454
- [Cieslak2019] M. J. Cieslak, K. A. A. Gamage, R. Glover, "Critical Review of Scintillating Crystals for Neutron Detection", Crystals 2019, 9, 480.
- [Crane1991] T. W. Crane, M. P. Baker, "Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Chapter 13: Neutron Detectors", NUREG/CR-5550, LA-UR-90-732, March 1991
- [Crispin1967] A. Crispin, P. J. Hayman, "*Ionization loss of muons in a plastic scintillator*," Proc. Phys. Soc., vol. 83, no. 6, p. 1051, 1964.
- [D'Mellow2007] B. D'Mellow, M. D. Aspinall, R. O. Mackin, M. J. Joyce, A. J. Peyton, "Digital discrimination of neutrons and gamma-rays in liquid scintillators using pulse gradient analysis", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 578 (2007) 191-197
- [DEN2019] Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives, monographie de la Direction de l'Energie Nucléaire, "L'instrumentation et la mesure en milieu nucléaire", collection E-den, Le Moniteur Editions, EAN : 9782281143034, ISBN : 978-2-281-14303-4, juin 2019
- [DeStefano2018] Communication privée
- [DeStefano2020] R. De Stefano, "Détection et caractérisation de matières nucléaires par interrogation et activation neutronique", these de doctorat, 2020
- [DeVita2016] R. De Vita, F. Ambi, G. Firpo, "Device and method for detecting neutrons and gamma rays", US 2016/0291196 A1, Oct. 6, 2016
- [Deyglun2014] C. Deyglun, "Détection de matière nucléaire avec la technique de la particule associée", thèse de doctorat, 2014.
- [DiFulvio2017] A. Di Fulvio, T. H. Shin, C. Sosa, M. L. Ruch, S. D. Clarke, D. L. Chichester, S. A. Pozzi, "Passive assay of plutonium metal plates using a fast-neutron multiplicity counter", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 855 (2017) 92-101
- [Dolan2014] J. L. Dolan, M. Flaska, A. Poitrasson-Riviere, A. Enqvist, P. Peerani, D. L. Chichester, S. A. Pozzi, "Plutonium measurements with a fast neutron multiplicity counter for nuclear safeguards applications", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 763 (2014) 565-574
- [Downs1958] J. W. Downs, F. L. Smith, "Organic-glass scintillators", Nucleonics 16 (1958) 94-96
- [EJ200] Eljen Technology, General Purpose EJ-200 EJ-204 EJ-208 EJ-212, accédé le 20/07/21 <https://eljentechnology.com/products/plastic-scintillators/ej-200-ej-204-ej-208-ej-212>
- [EJ-299] Eljen Technology, Pulse Shape Discrimination EJ-276 & EJ-276G (Formerly EJ-299-33A & EJ-299-34), site web accede le 28/02/2020, <https://eljentechnology.com/products/plastic-scintillators/ej-299-33a-ej-299-34>
- [EJ-301-309] Eljen Technology, Neutron / Gamma PSD EJ-301 EJ-309 , site web accédé le 28/02/2020 <https://eljentechnology.com/products/liquid-scintillators/>
- [Eleon2018] C. Eleon, F. Battiston, M. Bounaud, M. Ben Mosbah, C. Passard, B. Perot, "Study of Boron Coated Straws and mixed (10B/3He) detectors for passive neutron measurements of radioactive waste drums", 2018 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference Proceedings (NSS/MIC), Sydney, Australia, 2018, pp. 1-4.
- [Ellis2013] M. Ellis, C. Tintori, P. Schotanus, K. Duroe, P. A. Kendall, G. Mini, "The Effect of Detector Geometry on EJ-309 Pulse Shape Discrimination Performance" , 2013 IEEE

- [Ensslin1991_1] N. Ensslin, "Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Chapter 1: The origin of Gamma rays", NUREG/CR-5550,LA-UR-90-732, March 1991
- [Ensslin1991_11] N. Ensslin, "Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Chapter 11: The origin of Neutron Radiation", NUREG/CR-5550,LA-UR-90-732, March 1991
- [Ensslin1991_16] N. Ensslin, "Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Chapter 16: Principles of Neutron Coincidence Counting", NUREG/CR-5550,LA-UR-90-732, March 1991
- [Ensslin1998] N. Ensslin, "Application Guide to Neutron Multiplicity Counting", LA-13442-M, UC-700, November 1998.
- [Evrard2019] S. Evrad, J. Loridon, C. Passard, "Etalonnage du poste de mesure neutronique passive transportable pour la caractérisation des fûts de déchets entreposés dans H4 (INB56)", Note Technique CEA, CEA/DEN/CAD/DTN/SMTA/LMN/NT/2019-006-INDICE A
- [Fanchini2016] E. Fanchini, "Performance of an RPM Based on Gd-lined Plastic Scintillator for Neutron and Gamma Detection", IEEE Transactions on Nuclear Science, vol 63, no 1, February 2016
- [FASTER] "Fast Acquisition System for nuclear Research", LPC CAEN, <http://faster.in2p3.fr>
- [FASTER_QDC_TDC] C. Fontbonne, "FASTER QDC-TDC MnM User Manual", February 2019
- [Firestone1996] R. B. Firestone, V. S. Shirley, "Table of Isotopes", 1 Volume Set. 1996
- [Fontbonne2017] C. Fontbonne, "Acquisition Multiparamétrique de signaux de décroissance radioactive pour la correction des défauts instrumentaux: application à la mesure de la durée de vie du ^{19}Ne ", Thèse de doctorat, 30 Mars 2017
- [Galunov2006] N. Z. Galunov, E. V. Martynenko, O. A. Tarasenko, "Methodical aspects and measuring set-up for investigation the ability to selective detection of different ionizing radiations by organic scintillators", Functional Materials 13 (2006)
- [Gamage2015] K. A. A. Gamage, G. C. Taylor, "Neutron gamma fraction imaging: Detection, location, and identification of neutrons sources", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 788 (2015) 9-12
- [Geiger1975] K.W. Geiger, L. Van Der Zwan, "*Radioactive neutron source spectra from $^9\text{Be}(\alpha,n)$, Cross section data*", Nucl. Instr. Meth. Phys Research A 131 (1975) 315-321.
- [Glodo2017] J. Glodo, Y. Wang, R. Shawgo, C. Brecher, R. H. Hawrami, J. Tower, K.S. Shah, "New developments in Scintillators for Security Applications", Conference on the Application of Accelerators in Research and Industry, CAARI 2016, 30 October – 4 November 2016, Worth, TX, USA
- [Goldhagen2015] P. Goldhagen, "Use of Cosmic-Ray Neutron Data in Nuclear Threat Detection and Other Applications", Neutron Monitor Community Workshop – Honolulu, Hawaii, October 24-25 2015
- [Gozani1981] T. Gozani, "Active Nondestructive Assay of Nuclear Materials", NUREG/CR-0602, SAI-MLM-2585, January 1981
- [Gueorguiev2015] A. Gueorguiev, E. van Loef, G. Markosyan, L. Soundara-Pandian, J. Glodo, J. Tower, K. Shah, "Composite Neutron Gamma Detector", 2015 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (NSS/MIC), San Diego, CA, 2015, pp. 1-3.
- [Hehlen2018] M. P. Hehlen, B. W. Wiggins, A. Favalli, M. Iliev, K. D. Ianakiev, "Light propagation in a neutron detector based on 6Li glass scintillator particles in an organic matrix", J. Appl. Phys. 124, 124502 (2018) <http://doi.org/10.1063/1.5047433>, September 2018
- [Henzlova2013] D. Henzlova, L. G. Evans, H. O. Menlove, M. T. Swinhoe, J. B. Marlow, "Experimental evaluation of a boron-lined parallel plate proportional counter for use in nuclear safeguards coincidence counting", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 697 (2013), 114-121
- [Henzlova2015] D. Henzlova, R. Kouzes, R. McElroy, P. Peerani, M. Aspinall, K. Baird, A. Bakel, A. Borella, M. Bourne, L. Bourva, F. Cave, R. Chandra, D. Chernikova, S. Croft, G. Dermody, A. Dougan, J. Ely, E. Fanchini, P. Finocchiaro, V. Gavron, M. Kureta, K. Ianakiev, K. Ishiyama, T. Lee, Ch. Martin, K. Mc Kinny, H. Menlove, C. Orton, A. Pappalardo, B. Pedersen, D. Peranteau, R. Plenteda, S. Pozzi, M. Schear, M. Seya, E. Siciliano, S. Stave, L. Sun, M. Swinhoe, H. Tagziria, J. Takamine, S. Vaccaro, A.-L. Weber, T. Yamaguchi, H. Zhu, "Current Status of 3He Alternative Technologies for Nuclear Safeguards", LA-UR-15-21201 Ver. 3, PNNL 24307, July 2015.

- [Holm2013] P. Holm, K. Peräjävi, A.-P. Sihvonen, T. Siiskonen, H. Toivonen, “Neutron detection with a NaI spectrometer using high-energy photons”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A* 697 (2013) 59-63
- [Hou2021] S. Hou, J. Luo, “Improvement of plutonium sample property measurement based on fast neutron multiplicity counting”, *Annals of Nuclear Energy* 156 (2021) 108219.
- [IAEA1970] Agence Internationale de l’Energie Atomique, “Traité sur la non-prolifération des armes nucléaires”, INFCIRC/140, 22 avril 1970
- [IAEA2006] “Joint convention on the Safety of Spent Fuel Management and on the Safety of Radioactive Waste Management”, IAEA International Law Series no. 1, International Atomic Energy Agency, Vienna, 2006
- [Ilanakiev2014] K. D. Ilanakiev, M. P. Hehlen, M. T. Swinhoe, A. Favalli, M. L. Iliev, T. C. Lin, B. L. Bennett, M. T. Barker, “Neutron detector based on particles of ^6Li glass scintillator dispersed in organic lightguide matrix”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A* 784 (2015) 189-193
- [Ihantola2018] S. Ihantola, O. Tengblad, H. Toivonen, K. Peräjärvi, C. Csome, J. Borg, J. Paepen, H. Tagziria, P. Gattinesi, European Reference Network for Critical Infrastructure Protection: Radiological and Nuclear Threats to Critical Infrastructure Thematic Group: “Novel detection technologies for nuclear security”, EUR 29270 EN, doi:10.2760/703301
- [Isnel2019] L. Isnel, “Monte Carlo simulation analysis of neutron and gamma rays detection with plastic scintillators”, rapport de stage de License 3, CEA Cadarache, Laboratoire de Mesures Nucléaires, 2019.
- [Jallu2011] F. Jallu, P-G Allinei, P Bernard, J. Loridon, P. Soyer, D. Pouyat, L. Torreblanca, A. Reneleau, “The Use of Non-Destructive Passive Neutron Measurement Methods in Dismantling and Radioactive Waste Characterization”, IEEE 2011
- [Jallu2012] F. Jallu, P-G. Allinei, P. Bernard, J. Loridon, D. Pouyat, L. Torreblanca, “Cleaning up of a nuclear facility: Destocking of Pu radioactive waste and nuclear Non-Destructive Assays”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, B* 283 (2012) 15-23
- [Johnson2015] E. B. Johnson, C. Whitney, S. Vogel, J. F. Christian, K. Holbert, P. Chandhran, “High Event Rate, Pulse Shape Discrimination Algorithm for CLYC”, 2015 IEEE International Symposium on Technologies for Homeland Security (HST)
- [Jordan2008] K. A. Jordan, T. Gozani, J. Vujic, “Differential die-away analysis system response modeling and detector design”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A* 589 (2008), 436-444
- [Knoll1989] G. F. Knoll, “Radiation Detection and Measurement”, 4th edition, 1989
- [Kouzes2008] R. T. Kouzes, J. H. Ely, A. Seifert, E. R. Siciliano, D. R. Weier, L. K. Windsor, M. L. Woodring, J. Borgardt, E. Buckley, E. Flumerfelt, A. Oliveri, M. Salvitti, “Cosmic-ray-induced ship-effect neutron measurements and implication for cargo scanning at border”, *Nucl. Instr. Meth. Phys Research A* 587 (2008) 89-100.
- [Kouzes2009] Kouzes, Richard T. “The ^3He Supply Problem”. United States: N. p., 2009. Web. doi:10.2172/956899
- [Kouzes2010] R. T. Kouzes, J. H. Ely, L. E. Erikson, W. J. Kernan, A. T. Lintereur, E. R. Siciliano, D. L. Stephens, D. C. Stromswold, R. M. Van Ginhoven, M. L. Woodring, “Neutron detection alternatives to ^3He for national security applications”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 623 (2010) 1035-1045
- [Kouzes2014] R. T. Kouzes, J. H. Ely, A. T. Lintereur, E. R. Siciliano, “Boron-10 Based Neutron Coincidence Counter for Safeguards” , IEEE Transactions on Nuclear Science, vol. 61, no 5, October 2014
- [Kozlov2010] V.Yu. Kozlov, E. Armengaud, C. Augier, A. Benoit, L. Bergé, O. Besida, J. Blümer, A. Broniatowski, V. Brudanin, A. Chantelauze, M. Chapellier, G. Chardin, F. Charlieux, S. Collin, X. Defay, M. De Jésus, P. Di Stefano, Y. Dolgorouki, J. Domange, L. Dumoulin, K. Eitel, J. Gascon, G. Gerbier, M. Gros, M. Hannawald, S. Hervé, A. Juillard, H. Kluck, R. Lemrani, P. Loaiza, A. Lubashevskiy, S. Marnieros, X.-F. Navick, E. Olivieri, P. Pari, B. Paul, S. Rozov, V. Sanglard, S. Scorza, S. Semikh, A.S. Torrentó-Coello, L. Vagneron, M-A. Verdier, E. Yakushev, A detection system to measure muon-induced neutrons for direct Dark Matter searches, *Astroparticle Physics* (2010), doi: 10.1016/j.astropartphys.2010.06.001
- [Ku2018] K. Ku, J. F. Joung, H. Park, M-G. Kim, S. Park, W. Kim, “Fluorescent Organic Glass with Unique Optical and mechanical Properties”, *Advanced Functional Materials*, 2018, 1801394

- [Lacy2013] J. L. Lacy, A. Athanasiades, L. Sun, C. S. Martin, G. J. Vasquez-Flores, M. Regmi, S. Croft, "A Coincidence Counter Design Based on Boron-Coated Straw", Proceedings of the 55th Annual INMM Annual Meeting, Atlanta, Ga., 2013
- [Lam2018] S. Lam, J. Fiala, M. Hackett, S. Motakef, "A High-Performance CLYC(Ce)-PVT Composite for Neutron and Gamma Detection", IEEE transactions on Nuclear Science, vol. 65, no. 1, January 2018
- [Lane2015] T. K. Lane, E. J. Parma, "Delayed Fission Gamma-Ray Characteristics of ²³²Th, ²³³U, ²³⁵U, ²³⁸U and ²³⁹Pu", Sandia National Laboratory Report, SAND2015-7024, August 2015
- [Langeveld2017] W. G. J. Langeveld, M. J. King, J. Kwong, D. T. Wakeford, "Pulse Shape Discrimination Algorithms, Figures of Merit, and Gamma-rejection for Liquid and Solid Scintillators", IEEE Transaction on Nuclear Science, vol. 64, no. 7, July 2017
- [Langeveld2020] W. G. J. Langeveld, A. M. Glenn, S. A. Sheets, D. A. Strellis, N. P. Zaitseva, "Comparison of pulse shape discrimination performance of stilbene and liquid scintillator under high-count rate active interrogation conditions", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 954 (2020) 161204
- [Laraweb] Nucléide-Lara, Library for gamma and alpha emissions, www.nucleide.org/Laraweb/index.php, accédé le 26/08/2021
- [Lawrence2014] C. C. Lawrence, M. Febraro, T. N. Massey, M. Flaska, "Neutron response characterization for an EJ-299-33 plastic scintillation detector", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 759 (2014) 16-22
- [Liu2007] Z. Liu, J. Chen, P. Zhu, Y. Li, G. Zhang, "The 4.438 MeV gamma to neutron ratio for the Am-Be neutron source", Applied Radiation and Isotopes, 65, April 2007
- [Liu2007] Z. Liu, J. Chen, P. Zhu, Y. Li, G. Zhang, "The 4.438 MeV gamma to neutron ratio for the Am-Be neutron source", Applied Radiation and Isotopes, 65, April 2007
- [Liu2010] G. Liu, M. J. Joyce, X. Ma, M. D. Aspinall, "A digital Method for the Discrimination of Neutrons and gamma-rays With Organic Scintillation Detectors Using Frequency Gradient Analysis", IEEE Transactions on Nuclear Science, vol. 57, no. 3, June 2010
- [Manfredi2012] J. Manfredi, R. J. Charity, K. Mercurio, R. Shane, L. G. Sobotka, A. H. Wuosmaa, A. Banu, L. Trache, R. E. Tribble, "α-decay of excited states in ¹²C", Nuclear Structure 2012, Argonne National Laboratory, August 13-17 2012.
- [Marchais2019] T. Marchais, "Optimisation des mesures de spectrométrie gamma pour la prospection de l'uranium", thèse de doctorat, 2019
- [Marchi2019] T. Marchi, F. Pino, C. L. Fontana, A. Quaranta, E. Zanazzi, M. Vesco, M. Cinausero, N. Daldosso, V. Paterlini, F. Gramegna, S. Moretto, G. Collazuol, M. Degerlier, D. Fabris, S. Carturan, "Optical properties and pulse shape discrimination in siloxane-based scintillation detector", Scientific reports vol. 9,1 9154. 24 Jun. 2019, doi:10.1038/s41598-019-45307-8
- [Martinez2018] T. Martinez, A. Perez de Rada, D. Cano-Ott, R. Santorelli, I. Bandac, P. Garcia Abia, A. R. Garcia, A. Ianni, E. Mendoza, B. Montes, L. Romero, D. Villamarin, "Characterization of CLYC detector for underground experiments", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 906 (2018) 150-158
- [Mayer2015] M. Mayer, J. Nattress, C. Trivelpiece, I. Jovanovic, "Geometric optimization of a neutron detector based on a lithium glass-polymer composite", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 784 (2015) 168-171
- [McElroy2014] R. D. McElroy, S. Croft, "Application of 10B-Lined Proportional Counters" to Traditional Neutron Counting Applications in International Safeguards", IAEA Symposium on International Safeguards: Linking Strategy, Implementation, and people, October 2014, Vienna, Austria.
- [McElroy2015] R. D. McElroy, Jr. "3He Alternatives Summary Report", ORNL/TM-2015/310, November 2015.
- [MCNPX-PoliMi] E. Padovani, S. A. Pozzi, S. D. Clarke, E. C. Miller, « MCNPX-PoliMi Users Manual ».
- [Menlove1996] H. O. Menlove, D. H. Beddingfield, M. M. Pickrell, "The design of a high-efficiency neutron counter for waste drums to provide optimized sensitivity for plutonium assay", (CONF-970726--), United States

- [Menlove2011] H. O. Menlove, D. Henzlova, L. G. Evans, M. T. Swinhoe, J. B. Marlow, “³He Replacement for Nuclear Safeguards Applications – an Integrated Test Program to Compare Alternative Neutron Detectors”, LA-UR-11-02699, ESARDA 40th Annual Meeting, May 2011
- [Mirion_IWAS] Mirion Technologies, IWAS Integrated Waste Assay System, site internet : <https://www.mirion.com/products/iwas-integrated-waste-assay-system>, consulté le 13/02/2020
- [Mirion_JCC31] Mirion Technologies, JCC-31 High Level Neutron Coincidence Counter, site internet: <https://www.mirion.com/products/jcc-31-high-level-neutron-coincidence-counter>, consulté le 06/03/2020
- [Mirion_WM3100] Mirion Technologies, WM3100 HENC High-Efficiency Passive Neutron Counter, site internet: <https://www.mirion.com/products/wm3100-high-efficiency-passive-neutron-counter-henc>, consulté le 13/02/2020
- [Nakhostin2013] N. Nakhostin, “A new digital method for high-precision neutron-gamma discrimination with liquid scintillation detectors”, JINST 8 P05023
- [Oberstedt2016] S. Oberstedt, A. Oberstedt, A. Gatera, A. Göök, F-J. Hamsch, A. Moens, G. Sibbens, D. Vanleeuw, M. Vidali, “Prompt fission γ -ray spectrum characteristics from ²⁴⁰Pu(sf) and ²⁴²Pu(sf)”, Physical Review C 93, 054603 (2016).
- [Oberstedt2017] S. Oberstedt, A. Dragic, A. Gatera, A. Göök, F-J Hamsch, A. Oberstedt, “Prompt fission γ -ray data from spontaneous fission and the mechanism of fission-fragment de-excitation”, EPJ Web of Conferences, 146, 04060, 2017
- [Orano] Communication Privée, Orano
- [Paff2016] M. G. Paff, S. D. Clarke, S. A. Pozzi, “Organic liquid scintillation detector shape and volume impact on radiation portal monitors”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 825 (2016) 31-39
- [Passard2019] C. Passard, “Simulation des neutrons cosmiques”, présentation powerpoint, 27 juin 2019
- [Pawelczak2014] I. A. Pawelczak, A. M. Glenn, H. P. Martinez, M. L. Carman, N. P. Zaitseva, S. A. Payne, “Boron-loaded plastic scintillator with neutron- γ pulse shape discrimination capability”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 751 (2014) 62-69
- [Pedersen2015] B. Pedersen, J-M Crochemore, M. Mosconi, Valeriy Mayorov, H. Tagziria, A. Ocherashvili, E. Roesgen, P. Schwalbach, “A prototype BF₃ based neutron multiplicity counter for nuclear safeguards”, Proceedings of 37th ESARDA Symposium on Safeguards and Nuclear Non-Proliferation, UK, 19-21 may 2015
- [Perot1996] B. Perot, “Optimisation des méthodes de mesure neutronique active pour les déchets radioactifs et contribution à la modélisation d’un dispositif industriel”, thèse de doctorat, 1996
- [Perot2018] B. Perot, F. Jallu, C. Passard, O. Gueton, P-G. Allineï, L. Loubet, N. Estre, E. Simon, C. Carasco, C. Roure, L. Boucher, H. Lamotte, J. Comte, M. Bertaux, A. Lyoussi, P. Fichet, F. Carrel, “The characterization of radioactive waste : a critical review of techniques implemented or under development at CEA, France”, EPJ Nuclear Sciences & Technologies. 4, 3 (2018)
- [Porcher2013] J. B. Porcher, T. Lambert, N. Saurel, H. Schoech, L. Tondut, “Dossier de Recommandation pour l’Optimisation des Mesures Neutroniques Passives”, rapport CEA ISSN 0429-3460, 2013
- [Pozzi2003] S. A. Pozzi, E. Padovani, M. Marseguerra, “MCNP-PoliMi, a Monte-Carlo code for correlation measurements”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 513 (2003) 550-558
- [Pozzi2004] S. A. Pozzi, J. A. Mullens, J. T. Mihalcz, “Analysis of neutron and photon detection position for the calibration of plastic (BC-420) and liquid (BC-501) scintillators”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 524, 2004, 92-101.
- [Pozzi2012] S. A. Pozzi, W. J. Walsh, E. C. Miller, J. L. Dolan, M. Flaska, A. Enqvist, E. Padovani, J. K. Mattingly, D. L. Chichester, P. Peerani, “MCNPX-PoliMi for nuclear nonproliferation applications”, Nuclear Instruments and methods in Physics Research, A 694 (2012) 119-125
- [Pozzi2013] S. A. Pozzi, M. M. Bourne, S. D. Clarke, “Pulse Shape Discrimination in the plastic scintillator EJ-299-33”, Nuclear Instruments and methods in Physics Research A 723 (2013) 19-23

- [Robinson2015] S. M. Robinson, S. Stave, A. Lintereur, E. Siciliano, R. Kouzes, M. Bliss, "Neutron pileup algorithms for multiplicity counters", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 784 (2015) 293-297
- [ROOT_CERN] ROOT, Data Analysis Framework, <https://root.cern>, accédé le 19/07/2021
- [ROOT_TTree] ROOT Reference Guide, TTree Class Reference, TTree Library, accédé le 19/07/2021 <https://root.cern.ch/doc/master/classTTree.html>
- [Roy2018] P. Roy, K. Banerjee, A. K. Saha, C. Bhattacharya, J. K. Meena, P. Bhaskar, S. Mukhopadhyay, S. Bhattacharya, "Detailed investigation on the possibility of using EJ-299-33A plastic scintillator for fast neutron spectroscopy in large scale experiments", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 901 (2018) 198-202
- [Sampson1986] T. E. Sampson, "Plutonium Isotopic Composition by Gamma-Ray Spectroscopy: A Review", LA-10750-MS UC-10, September 1986
- [Schear2015] M. Schear, D. Ramsden, M. Foster, G. Dermody, H. Tagziria, B. Peterson, P. Peerani, "Monte Carlo Modeling and Experimental Evaluation of a 6LiF:ZnS(Ag) Test Module for Use in Nuclear Safeguards Neutron Coincidence Counting Applications", 2015, Symposium on Nuclear Safeguards: Linking Strategy, Implementation and People
- [Sears1992] V. F. Sears, "Neutron scattering lengths and cross sections", Neutron News, vol. 3, no. 3, pp 26-37, Jan 1992.
- [Shea2010] D. A. Shea, D. Morgan, (2011), "The Helium-3 Shortage: Supply, Demand, and Options for Congress", Congressional Research Service, R41419
- [Shin2015] T. H. Shin, M. J. Marcath, A. Di Fulvio, S. D. Clarke, S. A. Pozzi, "Neutron cross-talk characterization of liquid organic scintillators", 2015 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (NSS/MIC).
- [Shin2017] T. H. Shin, M. Y. Hua, M. J. Marcath, D. L. Chichester, I. Pázsit, A. Di Fulvio, S. D. Clarke, S. A. Pozzi, « Neutron Multiplicity Counting Moments for Fissile Mass Estimation in Scatter-Based Neutron Detection Systems », Nuclear Science and Engineering, 2017.
- [Shin2018] T. H. Shin, A. Di Fulvio, S. D. Clarke, S. A. Pozzi, "Stilbene-based Fast Neutron Multiplicity Counter or Nuclear Safeguards Applications", 2018 IEEE Conference Record
- [Shin2019] T. H. Shin, P. L. Feng, K. S. Carlson, S. D. Clarke, S. A. Pozzi, "Measured neutron light-output response for trans-stilbene and small-molecule organic glass scintillators", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 939 (2019) 36-45
- [Shirwadkar2013] U. Shirwadkar, E. V. D. van Loef, G. Markosyan, J. Glodo, L. Soundara-Pandian, V. Biteman, A. Gueorguiev, K. S. Shah, S. Pozzi, S. Clarke, M. Bourne, "New Generation Plastic Scintillators for Fast Neutron Spectroscopy and Pulse Shape Discrimination", 2013 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference Record (NSS/MIC), ISBN 978-1-4799-0534-8
- [Shirwadkar2017] U. Shirwadkar, A. Gueorguiev, E. V. van Loef, G. Markosyan, J. Glodo, J. Tower, K. S. Shah, S. Pozzi, S. Clarke, M. Bourne, "Multi-Signature Composite Detector System for Nuclear Non-proliferation", 2017 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (NSS/MIC), Atlanta, GA, 2017, pp. 1-4.
- [Shirwadkar2020] U. Shirwadkar, E. van Loef, G. Markosyan, J. Tower, M. Spens, C. Ji, L. S. Pandian, A. Gueorguiev, J. Glodo, K. Shah, S. Pozzi, S. Clarke, W. Langeveld, D. Strellis, J. Garcia, "Low-cost, multi-mode detector solutions", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 954, 2020, 161289
- [Siciliano2008] E. R. Siciliano, J. H. Ely, R. T. Kouzes, J. E. Swepe, D. M. Strachan, S. T. Yokuda, "Energy calibration of gamma spectra in plastic scintillators using Compton kinematics", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 594, 2008, 232-243
- [Simony_Deyglun2016] B. Simony, C. Deyglun, B. Pérot, C. Carasco, N. Saurel, S. Colas, J. Collot, "Cross-Talk Characterization in Passive Neutron Coincidence Counting of Radioactive Waste Drums With Plastic Scintillators", IEEE Transactions on Nuclear Science, Vol 63, no. 3, June 2016.
- [Simony2017_a] B. Simony, B. Perot, C. Carasco, F. Jallu, N. Saurel, S. Colas, P. Gironès, J. Collot, "Passive Neutron Coincidence Counting With Plastic Scintillators for the Characterization of Radioactive Waste Drums", IEEE Transactions on Nuclear Science, vol. 64, no. 10, october 2017

- [Simony2017] B. Simony, "Mesure neutronique passive des colis de déchets radioactifs par comptage des coïncidences avec des scintillateurs plastiques", thèse de doctorat, 2017.
- [Simpson2011] A. P. Simpson, S. Jones, M. J. Clapham, S. A. McElhaney, "Performance characteristics of a High Efficiency Passive Neutron Assay System using Alternative Neutron Detector to Helium-3", 2011 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record
- [Stewart1991] J. E. Stewart, "Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials, Chapter 14: Principles of Total Neutron Counting", NUREG/CR-5550,LA-UR-90-732, March 1991
- [Taggart2018] M. P. Taggart, P. J. Sellin, "Comparison of the pulse shape discrimination performance of plastic scintillators coupled to a SiPM", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 908 (2018) 148-154
- [Tagziria2015] H. Tagziria, M. Foster, M. Schear, D. Ramsden, G. Dermody, B. Pedersen, P. Peerani, P. Schwalbach, "Experimental Assessment of a 6LiF:ZnS(Ag) Prototype Neutron Coincidence Counter for Safeguards", ESARDA Bulletin No.53, 2015, pg.30
- [Toubon2001] H. Toubon, G. Mehlman, T. Gain, A. Lyoussi, B. Pérot, A.-C. Raoux, M. Huver, "Innovative nuclear measurement techniques used to characterize waste produced by COGEMA's new compaction facility", Proc. of WM'01, Waste Management Conference (2001) 19 p., February 25-March 1, 2001, Tucson, AZ, USA
- [vanEijk2004] C. W. E. van Eijk, "Radiation Measurements", 38 (4-6) (2004) 337
- [vanEijk2012] C. W. E. van Eijk, "Inorganic Scintillators for Thermal Neutron Detection", IEEE Transactions on Nuclear Science, vol. 59, no. 5, October 2012
- [vanLoef2002] E. V. van Loef, P. Dorenbos, C. W. E. van Eijk, K. W. Krämer, H. U. Güdel, "Scintillation and spectroscopy of the pure and Ce³⁺-doped elpasolites: Cs₂LiYX₆ (X=Cl,Br)", Journal of Physics Condensed Matter, 14, 2002, 8481-8496
- [vanLoef2012] E. V. van Loef, G. Markosyan, U. Shirwadkar, K. S. Shah, "Advanced Plastic Scintillators with Pulse Shape Discrimination", 2012 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference Record (NSS/MIC)
- [Verbeke2015] J. M. Verbeke, M. K. Prasad, N. J. Snyderman, « Neutron crosstalk between liquid scintillators », Nucl. Instr. Meth. Phys. Research A 794 (2015), 127-140.
- [Vivier2010] A. Vivier, R. Fottorino, B. Rousse, « Seuil de décision et limite de détection : estimation, interprétation et optimisation. 1^{ère} partie : Les principes de bases », Radioprotection 2010, Vol. 45 n°3, p 321-343
- [Waldo1981] R. W. Waldo, R. A. Karam, R. A. Meyer, "Delayed neutron yields: Time dependant measurements and a predictive model", Physical Review C 23, 113 – 1 March 1981.
- [Wengrowicz2020] U. Wengrowicz, A. Osovizky, A. Ocherashvili, D. Ginzburg, Y. Ifergan, E. Volasky, Y. Kadmon, A. Raveh, I. Orion, "Optimization of Neutron Detection Module based on Li-Glass scintillator and an array of SiPMs", EPJ Web of Conferences 225, 07012 (2020)
- [Winyard1971] R. Winyard, J. Lutkin, G. McBeth, "Pulse Shape Discrimination in Inorganic and Organic Scintillators" Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 1971, 95(1), 141-153
- [Woolf2015] R. S. Woolf, A. L. Hutcheson, C. Gwon, B. F. Philips, E. A. Wulf, "Comparing the response of PSD-capable plastic scintillator to standard liquid scintillator", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 784 (2015) 80-87
- [xmudat1998] V.G. Pronyaev, "XMuDat: Photon attenuation data on PC", August 1998, <https://www-nds.iaea.org/publications/iaea-nds/iaea-nds-0195.htm>
- [Yousefi2009] S. Yousefi, L. Lucchese, M. D. Aspinall, "Digital discrimination of neutrons and gamma-rays in liquid scintillators using wavelets", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 598 (2009) 551-555
- [Zaitseva2012] N. Zaitseva, B. L. Rupert, I. Pawelczak, A. Glenn, H. P. Martinez, L. Carman, M. Fasut, N. Cherepy, S. Payne, "Plastic Scintillators with efficient neutron/gamma pulse shape discrimination", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 668 (2012) 88-93
- [Zaitseva2013] N. Zaitseva, A. Glenn, H. P. Martinez, L. Carman, I. Pawelczak, M. Faust, S. Payne, "Pulse shape discrimination with lithium-containing organic scintillators", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 729 (2013) 747-754

[Zaitseva2015] N. Zaitseva, A. Glenn, L. Carman, H. P. Martinez, R. Hatarik, H. Klapper, S. Payne, "Scintillation properties of solution-grown trans-stilbene single crystals", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 789 (2015) 8-15

[Zaitseva2018] N. P. Zaitseva, A. M. Glenn, A. N. Mabe, M. L. Carman, C. R. Hurlbut, J. W. Inman, S. A. Payne, "Recent developments in plastic scintillators with pulse shape discrimination", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A 889 (2018) 97-104

[Zhang2019] Q. Zhang, J. Yang, X. Li, S. Li, S. Hou, X. Su, M. Zhou, L. Zhuang, H. Lin, « High order fast neutron multiplicity measurement equations based on liquid scintillation detector », Applied Radiation and Isotopes 152 (2019), 45-51.

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

Au cours de travaux de thèse antérieurs, la possibilité d'employer les scintillateurs au plastique PVT (polyvinyle toluène) en alternative aux compteurs à hélium 3 pour la caractérisation du plutonium par mesure neutronique passive des coïncidences de fission dans les colis de déchets radioactifs a été démontrée [Deyglun2014] [Simony2017]. A la suite de ces travaux, cette thèse explore deux nouvelles méthodes d'analyse des trains d'impulsions générés par les scintillateurs plastiques ainsi que la qualification expérimentale de ces méthodes avec un dispositif de mesure à l'échelle 1 pour fûts de 100 ou 200 litres. La méthode classique du registre à décalage, développée pour les compteurs hélium 3, sensibles aux neutrons thermiques, a été mise en œuvre pour la mesure des multiplicités de rayonnements gamma et neutroniques de fission avec les scintillateurs au plastique PVT, sensibles aux neutrons rapides. L'autre méthode permet d'identifier la nature et l'origine des coïncidences triples grâce aux écarts de temps entre les trois impulsions qui les composent et qui peuvent être visualisé dans un histogramme 2D. Les deux approches ont d'abord été testées expérimentalement sans matrice et avec un dispositif comportant 8 scintillateurs PVT. Des sources de ^{252}Cf pour le signal utile de fission, AmBe pour les réactions parasites (α, n), ^{60}Co et ^{137}Cs pour les émissions gamma parasites, ont permis de simuler différents ratios signal (^{252}Cf) sur bruit (AmBe, ^{60}Co , ^{137}Cs). La méthode basée sur les temps de détection des impulsions des coïncidences triples permet d'obtenir le meilleur rapport signal/ bruit (7 vs 2.3). Des simulations numériques avec MCNPX-PoliMi ont permis de valider l'interprétation des mesures et de quantifier l'efficacité de l'algorithme de rejet des événements de diaphonie, qui consiste à ignorer, pour chaque impulsion, les événements enregistrés dans les détecteurs voisins et proches temporellement. Malgré une perte des coïncidences utiles d'un facteur 4 à 5, les événements de diaphonie sont supprimés dans une bien plus grande proportion.

Des essais avec un fût maquette de 118 L contenant une matrice organique ou métallique ont ensuite été réalisés avec un dispositif comprenant 16 scintillateurs, des canaux d'instrumentation qui permettent le positionnement des sources en diverses positions radiales et axiales, un écran de plomb de 5 cm d'épaisseur devant les détecteurs et une électronique rapide (FASTER, CNRS). Le bruit de fond a été évalué pour chaque matrice, avec ou sans l'écran de plomb. Pour limiter l'impact des coïncidences élevées imputées aux rayonnement cosmiques qui font varier le bruit de fond de façon importante, il serait intéressant à terme de rejeter les multiplicités supérieures ou égales à 5 dans les données mesurées. Le bruit de fond devra aussi être mesuré avant ou après chaque mesure de colis pour tenir compte de sa variabilité journalière (pression atmosphérique) et à plus long terme (cycles solaires). L'utilisation d'un scintillateur PVT au-dessus du système de mesure comme veto cosmique serait aussi envisageable.

Les effets de localisation du contaminant (source ponctuelle de ^{252}Cf en diverses positions au sein du colis) sont de 27 % pour la matrice de fer de densité apparente 0,5 et 41 % pour celle de bois de densité apparente 0,3. Des simulations numériques ont montré qu'en centrant simplement le fût par rapport aux détecteurs, ces incertitudes sont réduites à environ 17 et 15 %, respectivement. Par ailleurs, la mesure avec la matrice métallique présente un coefficient de sensibilité 2 à 3 fois plus important (selon la position) qu'avec la matrice organique, en raison d'une moindre atténuation neutronique. En pratique, des mesures de transmission sont réalisables pour caractériser les propriétés d'atténuation neutroniques et gamma du colis de déchet. Il est aussi possible d'utiliser lors des étalonnages plusieurs colis étalons représentatifs des différentes natures de déchets technologiques à mesurer (métalliques, organiques, céramiques, mixtes...).

Les premières estimations de la limite de détection (LD) pour 30 min de mesure sont de l'ordre de 100 ou 500 mg de ^{240}Pu équivalent dans le cas de la matrice métallique ou organique, avec la nouvelle méthode d'identification des coïncidences triples. Ces valeurs offrent peu de marge en pratique car la plupart des colis de déchets réels ne contiennent que quelques grammes de plutonium. A titre de comparaison, le système IWAS (*Integrated Waste Assay System*), développé par Mirion Technologies, présente une LD en 1 h de mesure de 30 mg. Ces LD peuvent être diminuées en augmentant le temps de mesure, en filtrant les impulsions de multiplicité élevée du bruit de fond cosmique, en ajoutant des détecteurs en dessous et au-dessus du colis et réduisant l'épaisseur de plomb devant les détecteurs car avec 5 cm, 96 % des coïncidences de fission spontanée sont perdues. La réduction de l'épaisseur de plomb engendrera toutefois une augmentation importante du taux de comptage total et donc des coïncidences accidentelles. Une étude paramétrique sera donc nécessaire pour trouver l'épaisseur optimale. Du côté de l'électronique, le seuil de coupure bas en énergie pourrait également être abaissé pour conserver un plus grand nombre de neutrons de fission spontanée. En effet, le seuil de 100 keVee élimine 30 % de ces derniers et pourrait être abaissé car les raies gamma de basse énergie sont dorénavant éliminées par le plomb.

Les fenêtres temporelles pour l'estimation des coïncidences accidentelles ont été optimisées pour limiter la sous-estimation liée au temps mort d'intégration des charges surtout visible à fort taux de comptage, et le risque de surestimation causé par le rejet incomplet de la diaphonie à fort ratio alpha. Une correction empirique du temps mort lié à la fenêtre d'intégration de la charge pourrait être proposée, basée sur l'amplitude des discontinuités observées dans la zone des coïncidences accidentelles. Pour ce qui concerne la diaphonie, le signal net des sources de fission au centre des deux matrices reste « mesurable » (surestimation inférieure à 50 %) jusqu'à un ratio alpha de 12 environ. Au-delà, le signal utile est difficilement discernable des contributions parasites dues aux sources (α, n). Il serait alors intéressant d'identifier les colis à fort ratios alpha, par exemple via des ratios de comptage des singulets (S) sur doublets (D), S/D, ou sur triplets (T), S/T. Cette approche pourrait aussi permettre

de détecter la présence du curium, émetteur parasite par fission spontanée conduisant à surestimer le signal du plutonium. Ainsi, de grands rapports S/D ou S/T indiqueraient des forts ratio alpha, tandis que des faibles rapports S/D ou S/T indiqueraient la présence de curium car le nombre moyen de neutrons émis par fission est respectivement de 2,54 et 2,72 pour le ^{242}Cm et le ^{244}Cm , contre 2,15 pour le ^{240}Pu .

Pour améliorer l'extraction du signal, on pourrait étendre la région d'intérêt (ROI) dans les histogrammes 2D jusqu'à 40 ns au lieu de 30 ns actuellement, pour prendre en compte plus de neutrons de fission. Il serait aussi intéressant de soustraire la contribution des coïncidences de type $\gamma\gamma\gamma$ dans la ROI qui apparaissent dans la ROI à cause de la résolution temporelle limitée du système de mesure. Cette résolution pourrait être améliorée en optimisant les paramètres électroniques (haute tension, seuil, restauration de la ligne de base) et en utilisant un photomultiplicateur à chaque extrémité des scintillateurs PVT.

Enfin, la méthode permettant d'identifier la nature des particules à l'origine des coïncidences triples pourrait être étendue aux coïncidences impliquant au minimum 4 particules qui pourraient être visualisées avec des histogrammes 3D. Exploiter les coïncidences de type $\gamma n n n$ ou $\gamma\gamma n n$ semble particulièrement intéressant compte tenu de la faible probabilité qu'un événement γn se transforme en coïncidence $\gamma n n n$ et $\gamma\gamma n n$ par double diaphonie neutron et/ou gamma. La perte de statistique de comptage inhérente à la détection de 4 particules en coïncidence au lieu de 3 pourrait être compensée par l'ensemble des perspectives mentionnées précédemment.

D'un point de vue algorithmique, il serait aussi intéressant d'adapter aux scintillateurs plastiques le formalisme mathématique développé pour les systèmes de petites dimensions, équipés de détecteurs à neutrons rapides capables de discriminer neutrons et rayonnements gamma [Verbeke2015] [Shin2015] [Shin2017] [Zhang2019] [Hou2021], puis de comparer cette approche avec celle des histogrammes 2D.

La méthode permettant d'identifier la nature des particules à l'origine des coïncidences triples développée au cours de cette thèse pourrait s'appliquer à la grande majorité des colis réels de déchets technologiques plutonifères, dont les ratios alpha dépassent rarement 10 et dont les taux de comptage attendus dans notre système sont le plus souvent inférieurs à 10^5 s^{-1} . Dans un avenir proche, elle pourrait faire l'objet d'une collaboration industrielle pour son développement et son introduction sur le marché à un coût très compétitif par rapport aux systèmes de mesure à base de détecteurs ^3He .

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[Deyglun2014] C. Deyglun, "Détection de matière nucléaire avec la technique de la particule associée", thèse de doctorat, 2014.

[Hou2021] S. Hou, J. Luo, "Improvement of plutonium sample property measurement based on fast neutron multiplicity counting", *Annals of Nuclear Energy* 156 (2021) 108219.

[Shin2015] T. H. Shin, M. J. Marcath, A. Di Fulvio, S. D. Clarke, S. A. Pozzi, "Neutron cross-talk characterization of liquid organic scintillators", 2015 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (NSS/MIC).

[Shin2017] T. H. Shin, M. Y. Hua, M. J. Marcath, D. L. Chichester, I. Pázsit, A. Di Fulvio, S. D. Clarke, S. A. Pozzi, « Neutron Multiplicity Counting Moments for Fissile Mass Estimation in Scatter-Based Neutron Detection Systems », *NuclearScience and Engineering*, 2017.

[Simony2017] B. Simony, "Mesure neutronique passive des colis de déchets radioactifs par comptage des coïncidences avec des scintillateurs plastique", thèse de doctorat, 2017

[Verbeke2015] J. M. Verbeke, M. K. Prasad, N. J. Snyderman, « Neutron crosstalk between liquid scintillators », *Nucl. Instr. Meth. Phys. Research A* 794 (2015), 127-140.

[Zhang2019] Q. Zhang, J. Yang, X. Li, S. Li, S. Hou, X. Su, M. Zhou, L. Zhuang, H. Lin, « High order fast neutron multiplicity measurement equations based on liquid scintillation detector », *Applied Radiation and Isotopes* 152 (2019), 45-51.

ANNEXES

ANNEXE 1 : MATHEMATIQUES DU COMPTAGE DES MULTIPLICITES

Dans le cas de mesures de fissions spontanées, les trains d'impulsions enregistrés peuvent être traités de façon à obtenir plus d'informations que les comptages totaux (singulets de neutrons) ou des paires (notées R dans le §2.1.3 du chapitre 1 et qui sera noté D, pour doublets, dans ce paragraphe). En effet, chaque fission spontanée peut émettre de nombreux neutrons avec les probabilités données dans le Tableau 2 pour les différentes multiplicités.

Le comptage des multiplicités apporte des équations supplémentaires par rapport au comptage total et au comptage des paires, qui peuvent être précieuses pour les mesures de plutonium dans les colis de déchets où il y a souvent plus d'inconnues à considérer, à savoir la masse de plutonium, le coefficient de multiplication M, le ratio alpha et l'efficacité de détection. Cette dernière dépend en effet de l'atténuation neutronique par les matériaux constitutifs des déchets (effet de matrice) et de la position du plutonium dans le colis (effet de localisation), paramètres souvent mal maîtrisés, voire inconnus. Les deux informations du comptage des singulets et des doublets ne permettent de déterminer que deux inconnues, ce qui nécessite d'émettre des hypothèses comme l'absence de multiplication (M est généralement proche de 1 dans les colis de déchets radioactifs, mais il est moins fréquent de pouvoir garantir la connaissance de α ou ε).

Cette méthode est cependant peu utilisée pour la mesure des colis de déchets car elle nécessite un rendement de détection très élevé (idéalement supérieur à 50 % car il intervient comme ε^3 pour les triplets) ou un rendement plus faible mais une émission neutronique de fission très importante, ce qui est rarement le cas pour les masses de plutonium présentes dans les déchets [Porcher2013].

Une évolution du système de comptage par la méthode du registre à décalage est possible afin de prendre en compte les différents ordres de multiplicités. Le principe de fonctionnement est présenté dans la Figure 3, et un exemple de tableau de comptage des multiplicités par cette méthode est donné dans le Tableau 4 de ce document.

La distribution (R+A) est le résultat des contributions d'une distribution R des multiplicités corrélées et d'une distribution A des multiplicités accidentelles qu'il est nécessaire de déconvoluer pour en extraire les taux de doublets D (paires d'impulsions issues de la même fission) et de triplets T (3 impulsions dues à la même fission) réels en prenant en compte :

- le nombre total des combinaisons possibles de 2 impulsions coïncidentes et le nombre total des combinaisons possibles de 3 impulsions coïncidentes, parmi la totalité des ordres de multiplicité enregistré par le registre à décalage. Ces nombres de combinaisons sont obtenus grâce aux coefficients binomiaux, et sont donnés dans le Tableau 67 suivant :

Tableau 67. Dénombrement des combinaisons de 2 impulsions et de 3 impulsions coïncidentes dans les ordres de multiplicités neutroniques. Les impulsions en rouge symbolisent les déclenchements des fenêtres de coïncidences.

Ordre de multiplicité		Nombre de combinaisons possibles de 2 impulsions	Nombre de combinaisons possibles de 3 impulsions
M0		0	0
M1		$\binom{2}{2} = 1$	0
M2		$\binom{3}{2} = 3$	$\binom{3}{3} = 1$
M3		$\binom{4}{2} = 6$	$\binom{4}{3} = 4$
Mn		$\binom{n}{2} = \frac{n!}{(n-2)!2!} = \frac{n(n-1)}{2}$	$\binom{n}{3} = \frac{n!}{(n-3)!3!} = \frac{n(n-1)(n-2)}{6}$

- le fait qu'au sein d'une même fenêtre de coïncidence peuvent se trouver des impulsions corrélées (générées par des neutrons provenant du même évènement source, i.e. de la même fission spontanée) et des impulsions non corrélées dites accidentelles (ne provenant pas d'une même fission), chaque impulsion ouvrant une fenêtre de coïncidence, qu'elle soit corrélée ou non. Pour déconvoluer les coïncidences réelles des coïncidences accidentelles, il est possible d'exprimer les moments factoriels $(R+A)_k$ de la distribution (R+A) comme la somme de deux contributions, selon l'équation suivante [Ensslin1998] :

$$(R + A)_k = \frac{S_A}{S} (A)_k + \frac{m_{240Pu}^{eq} N_{240Pu} \epsilon V}{S} g_k \quad (47)$$

Où :

- S est le taux de comptage total, aussi appelé taux de singulets (qui comprend la totalité des impulsions, provenant aussi bien de fissions spontanées que d'évènements parasites) (en coups.s⁻¹) ;
- S_A est le taux de comptage des impulsions accidentelles (en coups.s⁻¹). Le taux de comptage des impulsions de fissions spontanées est donc donné par S – S_A et équivaut à $m_{240Pu}^{eq} N_{240Pu} \epsilon V$;
- g_k sont les moments de la distribution g(i) des impulsions qui suivent un déclenchement d'une fenêtre de coïncidence par une fission spontanée.

Le premier terme de la somme dans l'équation (47) représente la fraction (S_A / S) de la distribution des multiplicités accidentelles (A), dont la fenêtre de coïncidence est déclenchée par une impulsion parasite (qui ne vient pas d'une fission spontanée). Le deuxième terme représente la fraction restante des fenêtres de coïncidences, $(m_{240Pu}^{eq} N_{240Pu} \epsilon V) / S$ qui sont déclenchées par des évènements de fissions spontanées. Les multiplicités dont les fenêtres de coïncidence sont déclenchées par des impulsions de fissions spontanées ne sont pas forcément des multiplicités réelles (présence possible d'impulsions non corrélées avec l'impulsion initiatrice d'une fenêtre). Cette fraction des singulets n'est donc pas directement multipliée par les moments factoriels (R)_k de la distribution (R) des multiplicités réelles, mais par les moments factoriels g_k d'une distribution g(i), qui est une convolution des distributions (R) et (A). Les moments g_k s'expriment en fonction de R_k et de A_k de la manière suivante [Ensslin1998]:

$$g_k = \sum_{j=0}^k \binom{k}{j} R_j A_{k-j} \quad (48)$$

Ce qui permet de réécrire l'équation (47) :

$$(R + A)_k - (A)_k = \frac{m_{240Pu}^{eq} N_{240Pu} \epsilon V}{S} \left[\sum_{j=0}^k \binom{k}{j} R_j A_{k-j} - A_k \right] \quad (49)$$

Les taux de doublets et de triplets (coïncidences réelles de 2 et 3 impulsions corrélées, respectivement) s'expriment alors comme les produits du taux de singulets réels (S – S_A) avec les premiers moments de la distribution des multiplicités R (R₁ pour les doublets et R₂ pour les triplets), selon les équations suivantes [Ensslin1998] :

$$S = m_{240Pu}^{eq} N_{240Pu} \epsilon V (R)_0 = m_{240Pu}^{eq} N_{240Pu} \epsilon V \quad (50)$$

$$D = m_{240Pu}^{eq} N_{240Pu} \epsilon V (R)_1 = m_{240Pu}^{eq} N_{240Pu} \epsilon V ((R + A)_1 - (A)_1) \quad (51)$$

$$T = \frac{m_{240Pu}^{eq} N_{240Pu} \epsilon V (R)_2}{2!} = \frac{m_{240Pu}^{eq} N_{240Pu} \epsilon V}{2} ((R + A)_2 - (A)_2 - 2(A)_1((R + A)_1 - (A)_1)) \quad (52)$$

Pour exprimer ces grandeurs d'intérêts en fonction des paramètres du système de mesure (rendement et temps moyen de détection, pré-délai dû au temps mort, bornes de la fenêtre R+A), nous exprimerons tout d'abord la distribution des multiplicités de fission à l'émission P_{fs}(ν), dont les moments factoriels sont reliés aux moments factoriels de R :

- Afin de prendre en compte l'efficacité totale de détection, nous exprimerons P_{fs}(ν) en fonction de P_{det}(ν), la distribution des fissions détectées ;
- En prenant en compte la fraction des multiplicités réellement mesurées parmi les multiplicités détectées, définie dans le §2.1.3 du chapitre 1, qui est due aux pertes engendrées par la présence du pré-délai P de l'électronique et d'une taille finie G de la fenêtre de coïncidence, l'expression de P_{det}(ν) peut être associée à R, et donc *in fine*, à S, D et T.

En considérant, du point de vue de l'émission neutronique, qu'un évènement de type (α,n) est un évènement de fission spontanée dont la multiplicité est toujours ν = 1, il est possible d'écrire la distribution des fissions émises comme [Ensslin1998] :

$$P(\nu) = \frac{\alpha \nu_{s1} \delta_{1\nu} + P_{fs}(\nu)}{1 + \alpha \nu_{s1}} \quad (53)$$

Où :

- δ_{1v} est la fonction de Kronecker qui vaut ici 1 lorsque $v = 1$, ce qui représente la seule condition possible pour que la réaction (α, n) soit comptabilisée comme une fission (multiplicité neutronique de 1), et 0 sinon ;
 - ν_{s1} est le premier moment factoriel réduit de la distribution des multiplicités de fissions spontanées.
- Les 3 premiers moments de la distribution $P(v)$ sont donnés par les relations suivantes [Ensslin1998] :

$$\nu_1 = M\nu_{s1}(1 + \alpha) \quad (54)$$

$$\nu_2 = M^2 \left[\nu_{s2} + \left(\frac{M-1}{\nu_{i1}-1} \right) \nu_{s1}(1 + \alpha)\nu_{i2} \right] \quad (55)$$

$$\nu_3 = M^3 \left[\nu_{s3} + \left(\frac{M-1}{\nu_{i1}-1} \right) [3\nu_{s2}\nu_{i2} + \nu_{s1}(1 + \alpha)\nu_{i3}] + 3 \left(\frac{M-1}{\nu_{i1}-1} \right) \nu_{s1}(1 + \alpha)\nu_{i2}^2 \right] \quad (56)$$

Où ν_{s1} , ν_{s2} , ν_{s3} , ν_{i1} , ν_{i2} et ν_{i3} sont les 3 premiers moments réduits des distributions des neutrons de fissions spontanées et de fissions induites, respectivement, et dont les expressions sont explicitées par l'équation (13). La distribution des multiplicités de fissions détectées s'exprime comme [Ensslin1998]:

$$P_{det}(v) = \sum_{v=n}^{max} P(v) \binom{v}{n} \varepsilon^n (1 - \varepsilon)^{v-n} \quad (57)$$

Enfin, la fraction des multiplicités comptées, pour une distribution de Rossi-alpha avec une seule exponentielle décroissante de constante de temps τ , s'exprime tel que dans l'équation (9), de la manière suivante [Ensslin1998]:

$$f(t) = e^{-\frac{P}{\tau}} \left(1 - e^{-\frac{G}{\tau}} \right) \quad (58)$$

En considérant que n neutrons ont été détectés, lorsque qu'un 1^{er} neutron est détecté à un temps t et déclenche une fenêtre de coïncidence, la probabilité p_t qu'un des $(n-1)$ neutrons restants soit détecté dans un intervalle de temps compris entre $t+P$ et $t+P+G$ (c'est-à-dire dans la fenêtre de coïncidence), est donnée par l'équation suivante [Ensslin1998] :

$$p_t = \int_{t+P}^{t+P+G} f(s) ds \quad (59)$$

En intégrant sur le temps t , la probabilité $p_{t,i}$ d'obtenir une impulsion neutronique initiatrice d'une fenêtre de coïncidence et de compter i neutrons parmi les $(n-1)$ restants est donc [Ensslin1998] :

$$p_{t,i} = n \int_0^{\infty} f(t) \binom{n-1}{i} p_t^i (1 - p_t)^{(n-i)-1} dt \quad (60)$$

La distribution des multiplicités corrélées déclenchées par une impulsion de fission spontanée, $R(i)$, s'exprime alors comme [Ensslin1998] :

$$R(i) = \sum_{n=i+1}^N \frac{nD(n)}{\varepsilon\nu_1} \int_0^{\infty} f(t) \binom{n-1}{i} p_t^i (1 - p_t)^{(n-i)-1} dt \quad (61)$$

Où le terme $\varepsilon\nu_1$ présent au dénominateur provient de la normalisation de la distribution R ($R_0 = 1$). Les premiers moments de cette distribution, R_1 et R_2 s'expriment alors de la manière suivante [Ensslin1998] :

$$R_1 = \sum_{i=1}^{N-1} iR(i) = \frac{\varepsilon^2\nu_2}{\varepsilon\nu_1} \int_0^{\infty} f(t) \left\{ \int_{t+P}^{t+P+G} f(s) ds \right\} dt = \frac{\nu_2}{\nu_1} \frac{\varepsilon f}{n+1} \quad (62)$$

$$R_2 = \sum_{i=2}^{N-1} i(i-1)R(i) = \frac{\varepsilon^3\nu_3}{\varepsilon\nu_1} \int_0^{\infty} f(t) \left\{ \int_{t+P}^{t+P+G} f(s) ds \right\}^2 dt = \frac{\nu_3}{\nu_1} \frac{\varepsilon^2 f^2}{n+1} \quad (63)$$

Finalement, les expressions littérales des taux de singulets, doublets et triplets peuvent se réexprimer en fonction des paramètres du système de mesure et des propriétés de l'objet mesuré [Ensslin1998] :

$$S = m_{240Pu}^{eq} N_{240Pu} \varepsilon \nu_1 = m_{240Pu}^{eq} N_{240Pu} \varepsilon \nu_{s1} (1 + \alpha) \quad (64)$$

$$D = \frac{m_{240Pu}^{eq} N_{240Pu} \varepsilon^2 M^2 f(t)}{2} \left(v_{s2} + \left(\frac{M-1}{v_{i1}-1} \right) v_{s1} (1+\alpha) v_{i2} \right) \quad (65)$$

$$T = \frac{m_{240Pu}^{eq} N_{240Pu} \varepsilon^3 M^3 f(t)^2}{6} \left[v_{s3} + \left(\frac{M-1}{v_{i1}-1} \right) [3v_{s2}v_{i2} + v_{s1}(1+\alpha)v_{i3}] + 3 \left(\frac{M-1}{v_{i1}-1} \right)^2 v_{s1}(1+\alpha)v_{i2}^2 \right] \quad (66)$$

Les facteurs « 2 » et « 6 » obtenus aux dénominateurs des équations (65) et (66) proviennent de l'analyse combinatoire des trains impulsions. Cela se traduit par un facteur « k! » supplémentaire au dénominateur de l'expression des moments factoriels (équation (13), 2! = 2 et 3! = 6), et les dénombrements associés sont présentés dans le Tableau 67. Le facteur « k! » intégré dans l'expression des moments factoriels donne l'expression des « moments factoriels réduits » [Ensslin1998].

Ces trois équations permettent donc d'extraire trois inconnues parmi les quatre grandeurs d'intérêt : efficacité de détection ε , masse équivalente en plutonium 240 m_{240Pu}^{eq} , facteur multiplicatif M et ratio α . Trois de ces paramètres sont donc quantifiables à condition de connaître le quatrième (comme on l'a dit plus haut, en général $M \approx 1$ pour les déchets).

Dans le cas où l'efficacité de détection est connue, M est d'abord déterminée par la résolution du polynôme suivant [Ensslin1998] :

$$a + bM + cM^2 + M^3 = 0 \quad (67)$$

Où les coefficients a, b, et c ont pour équations :

$$a = \frac{-6T v_{s2} (v_{i1} - 1)}{\varepsilon^2 f^2 S (v_{s2} v_{i3} - v_{s3} v_{i2})} \quad (68)$$

$$b = \frac{2D [v_{s3} (v_{i1} - 1) - 3v_{i2} v_{s2}]}{\varepsilon f S (v_{s2} v_{i3} - v_{s3} v_{i2})} \quad (69)$$

$$c = \frac{6D v_{s2} v_{i2}}{\varepsilon f S (v_{s2} v_{i3} - v_{s3} v_{i2})} - 1 \quad (70)$$

Dès lors que M est déterminé, la masse équivalente en plutonium 240, ainsi que le ratio alpha au sein de l'objet mesuré, s'écrivent selon les équations suivantes [Ensslin1998] :

$$m_{240Pu}^{eq} = \frac{\frac{2D}{\varepsilon f} - \frac{M(M-1)v_{i2}S}{v_{i1}-1}}{\varepsilon M^2 N_{240Pu} v_{s2}} \quad (71)$$

$$\alpha = \frac{S}{m_{240Pu}^{eq} N_{240Pu} \varepsilon v_{s1} M} - 1 \quad (72)$$

Pour les cas de figure avec de faibles masses de plutonium dans des conteneurs de grands volumes, typiquement dans les fûts de déchets radioactifs, l'hypothèse d'une multiplication neutronique nulle ($M = 1$) est souvent une bonne approximation. Dans ces cas, le ratio alpha, la masse équivalente en plutonium 240 ainsi que l'efficacité de détection peuvent être déterminées. Les mesures de S, D et T permettent d'abord d'exprimer la valeur du ratio alpha [Ensslin1998] :

$$\alpha = \frac{3ST f^2 v_{s2}^2}{2D^2 f^2 v_{s1} v_{s3}} - 1 \quad (73)$$

Puis, la masse équivalente en plutonium 240 est donnée par :

$$m_{240Pu}^{eq} = \frac{S^2 f v_{s2}}{2D N_{240Pu} v_{s1}^2 (1+\alpha)^2} \quad (74)$$

A partir de laquelle l'efficacité de détection peut s'exprimer comme :

$$\varepsilon = \frac{S}{m_{240Pu}^{eq} N_{240Pu} v_{s1} (1+\alpha)} \quad (75)$$

Il est important de noter que l'ensemble du développement mathématique présenté ci-dessus s'appuie sur les approximations et les hypothèses de simplification suivantes [Ensslin1998] :

- les neutrons de fissions induites sont considérés comme étant émis au même instant que les neutrons « primaires » (par exemple le neutron d'une réaction (α, n) , ou bien les neutrons d'une fission spontanée) et ce, indépendamment du nombre de générations de multiplication qui se sont produites. Cette approximation est dénommée « modèle de superfission » [Boehnel1985]. Puisque le temps caractéristique d'un processus de fission (<1 ns) est très inférieur au temps de vie moyen des neutrons dans le système ($>1\mu s$), cette approximation est correcte, hormis pour les neutrons des fissions induites et pour les neutrons qui entrent de nouveau dans l'objet mesuré suite à des diffusions au sein du dispositif et/ou de l'environnement extérieur ;
- les probabilités de fissions ainsi que l'efficacité de détection sont supposées uniformes dans l'ensemble de l'objet mesuré, à l'image de l'hypothèse d'une source ponctuelle dans l'objet ;
- les neutrons en provenance des réactions (α, n) et des fissions spontanées sont supposés régis par le même spectre en énergie. Cette approximation n'est pas valide pour la plupart des origines de neutrons, si bien qu'il est important de concevoir le poste de mesure de sorte à ce que l'efficacité de détection soit la plus indépendante possible de l'énergie des neutrons.

ANNEXE 2 : PREMIERES ETAPES DE PRETRAITEMENTS DES DONNEES AVEC TRACNAR

La première étape de reconstruction du TTree est explicitée dans la Figure 90 suivante :

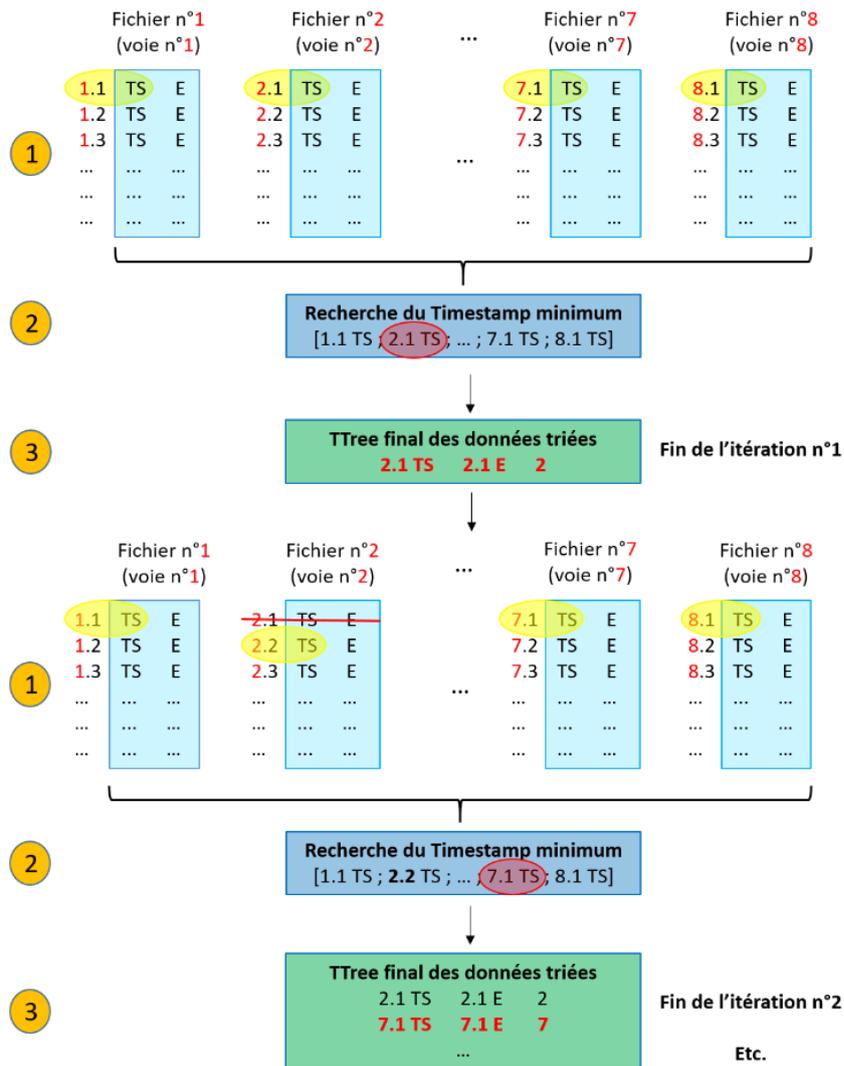


Figure 90. Diagramme de l'algorithme de tri par *timestamp* croissants de l'ensemble des 8 fichiers binaires obtenus lors des acquisitions avec CoPASS. TS est le *timestamp* (instant d'acquisition) et E est l'énergie.

L'algorithme consiste à lire dans un premier temps chaque première impulsion de chaque fichier pour y récupérer les 3 grandeurs d'intérêts : Instant d'acquisition, énergie et voie d'acquisition (étape 1). Les 8 valeurs de temps sont alors comparées par le programme pour trouver la valeur minimum (étape 2). Une fois ce minimum trouvé, le programme récupère l'ensemble des données de l'impulsion qui correspond à ce temps minimum pour les écrire dans l'arbre final des données (étape 3). Ces trois étapes se répètent autant de fois qu'il y a d'impulsions enregistrées dans l'ensemble des fichiers binaires. De plus, un pointeur sur la liste d'impulsions (itérateur qui se déplace par blocs de 24 octets) est déplacé dans le fichier qui comportait le temps minimum à l'itération précédente, afin d'aller lire l'impulsion suivante dans ce fichier et de ne pas réécrire plusieurs fois les mêmes données.

Une nouvelle colonne, nommée « *keVee* », est ensuite créée dans le TTree pour la conversion des canaux de la colonne E en énergie (keVee). TraCNAR utilise un processus itératif sur toutes les lignes du TTree pour lire les valeurs de l'énergie et de la voie d'acquisition. En fonction du numéro de la voie, les paramètres d'étalonnage correspondants sont appliqués sur la valeur E pour compléter la colonne keVee. S'ensuit alors une fonction filtre qui permet de supprimer l'ancienne colonne E des canaux et de supprimer les lignes dont l'énergie en keVee est inférieure au seuil de coupure bas paramétré. Dans nos applications, ce seuil sera toujours de 100 keVee.

Enfin, TraCNAR fait appel à l'algorithme de rejet de diaphonie dont une illustration est présentée dans la Figure 18 du chapitre 1, §4.3. Chaque ligne de l'arbre de données est parcourue et, pour chacune d'elle, un événement est considéré comme étant créé par de la diaphonie si :

- l'écart temporel avec l'impulsion de la ligne suivante est inférieur à une valeur paramétrée (dans le cadre de la thèse de Benoit Simony, cette valeur avait été fixée à 10 ns [Simony2016] [Simony2017], mais elle sera reconsidérée ici pour améliorer le rapport signal sur bruit) ;
- le détecteur (i.e. son numéro de voie de l'électronique) à l'origine de l'impulsion courante est voisin de celui de l'impulsion suivante.

Lorsque ces critères sont remplis pour un rang « i » donné dans le TTree, l'impulsion du rang suivant, « i+1 » est considérée comme une diaphonie par diffusion et l'index de cette ligne est stocké en mémoire. Tant que l'écart temporel avec les rangs suivants est inférieur au temps considéré, le test des voies voisines est toujours effectué. Ainsi, il est possible d'identifier de potentielles diffusions multiples entre plusieurs détecteurs, mais également d'identifier des diaphonies qui impliquent des impulsions non consécutives dans le TTree. Par exemple, il est possible qu'un évènement aléatoire ait généré une impulsion dans l'intervalle de temps qui sépare les deux impulsions générées par une diaphonie. Dans ce cas, le rang « i+1 » est conservé mais le rang « i+2 » est identifié comme une diaphonie par rapport à l'évènement initial de rang « i ». Une fois les itérations effectuées, l'ensemble de l'arbre est de nouveau scanné et chaque ligne réécrite dans un nouvel arbre, si et seulement si son index (son rang) n'a pas été identifié comme une diaphonie.

Enfin, les données ayant franchi l'ensemble de ces tests sont analysées par les méthodes de traitements des coïncidences telle que décrite dans le §2.1.4 du premier chapitre de ce manuscrit et dans le chapitre 2.

ANNEXE 3 : ETUDE DU FACTEUR LIMITANT POUR LES ACQUISITIONS DE DONNEES AVEC LE SYSTEME CAEN (DT5730 + CoPASS)

Dans le but d'étudier le problème rencontré à forts taux de comptage avec le système d'acquisition CAEN, un générateur d'impulsions DT5800D a été utilisé. Le dispositif des essais est présenté dans la Figure 91 suivante :

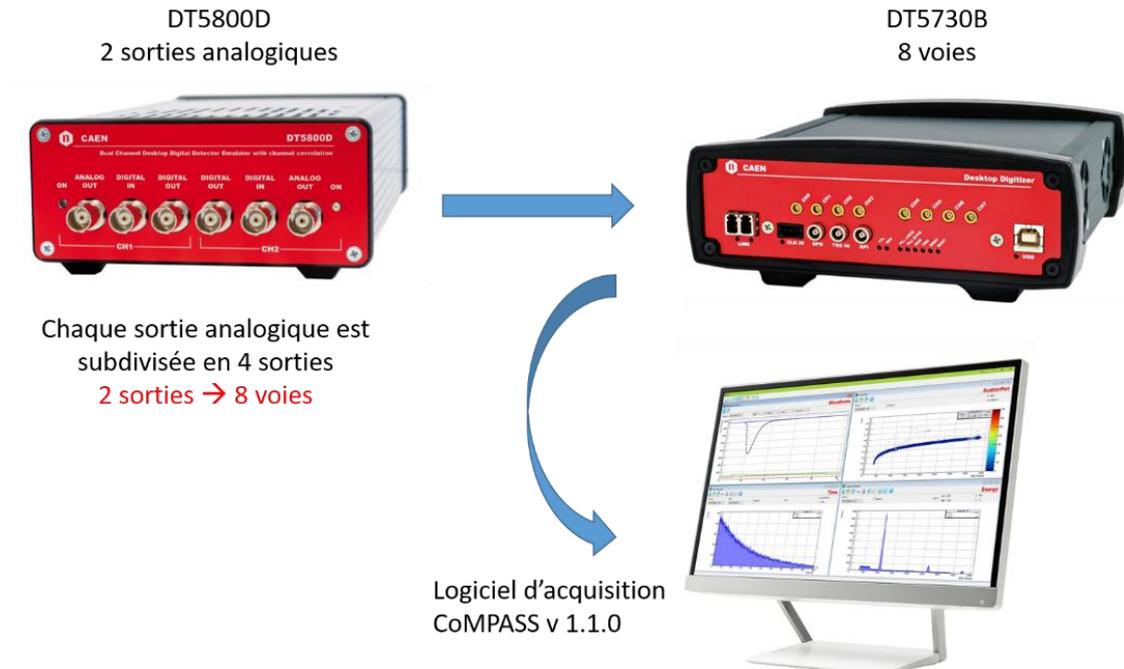


Figure 91. Diagramme du système fondé sur un émulateur d'impulsions DT5800, utilisé pour diagnostiquer les problèmes d'acquisition avec le numériseur DT5730 et le logiciel CoPASS.

Chaque sortie de l'émulateur est reliée à 4 voies d'entrée du numériseur, et distribue un taux d'impulsions identique pour chacune des voies. Différentes étapes de la chaîne d'acquisition ont été isolées pour les tests afin de rechercher un potentiel facteur limitant pour l'enregistrement des données sans pertes :

- les performances intrinsèques de l'ordinateur (mémoire vive, nombre de cœurs, carte mère). Un nouvel ordinateur plus performant est utilisé (32 Go de mémoire vive au lieu de 8 Go et 12 cœurs au lieu de 4) ;
- L'écriture des données sur disque. 4 disques de type SSD ont été monté en RAID0 (Redundant Array of Independent Disks) pour améliorer les performances de taux d'écritures de données jusqu'à 420 Mo/s, au lieu de quelques dizaines de Mo/s permises par un disque dur classique seul ;
- La transmission des données du numériseur vers le PC, avec une fibre optique A3818A PCI Express CONET2 entre le numériseur et le PC au lieu d'un transfert USB 3.0.

1) Nouvel ordinateur

Les Figure 92 et Figure 93 ci-dessous montrent que l'ensemble des acquisitions menées avec l'ordinateur plus performant ont commencé à montrer des pertes dans l'enregistrement des impulsions, quelques dizaines de secondes après le début de l'acquisition (30 s pour le cas à 150 kcps par voie, le moins pénalisant, et 20 s pour le cas à 210 kcps le plus pénalisant). Ces mesures montrent que les acquisitions se stabilisent vers 600 kcps (OCR) en taux de comptage total lorsque les pertes commencent à se produire. Des comportements périodiques inexplicables sont retrouvés pour certaines acquisitions, notamment pour 150, 180, et 210 kcps. La conclusion principale est que les performances de l'ordinateur ne semblent pas être impliquées dans les performances limitées du système d'acquisition.

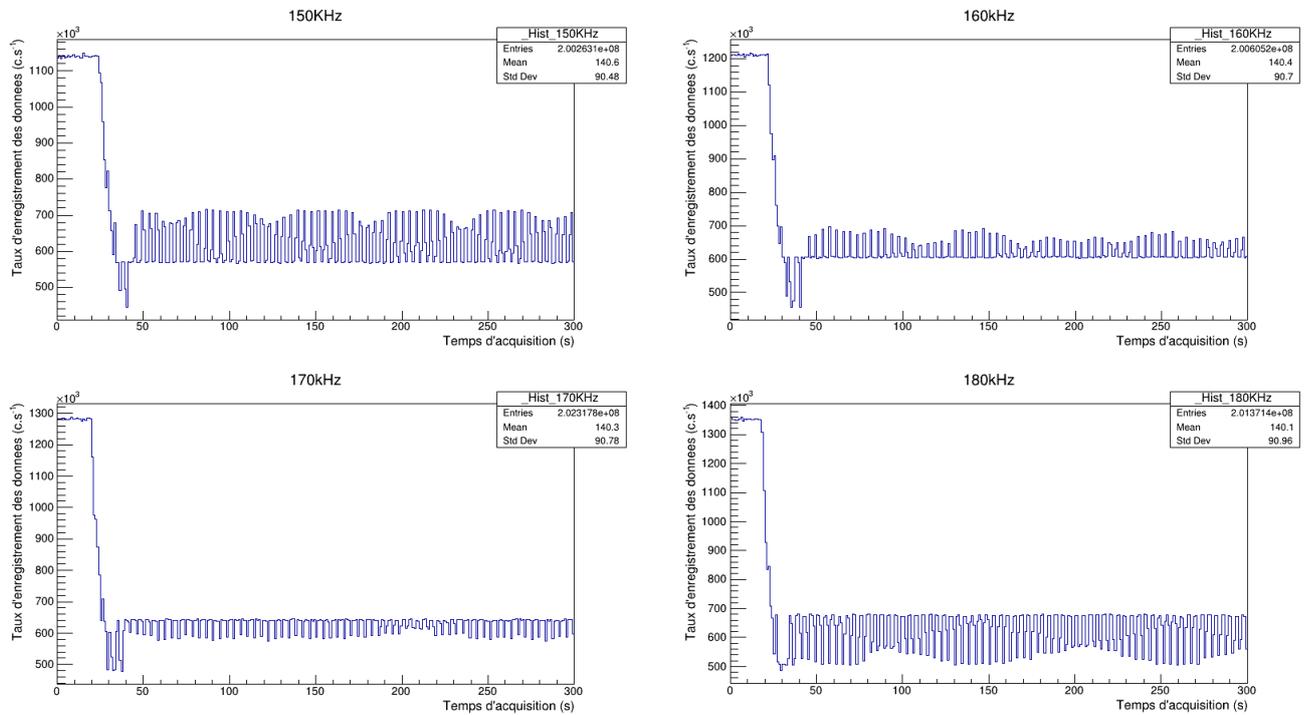


Figure 92. Diagnostic d'enregistrement des données pour 5 min d'acquisition avec l'émulateur d'impulsions selon une loi de Poisson sur les 8 voies d'acquisition du numériseur DT5730, de 150 à 180 kHz par voie.

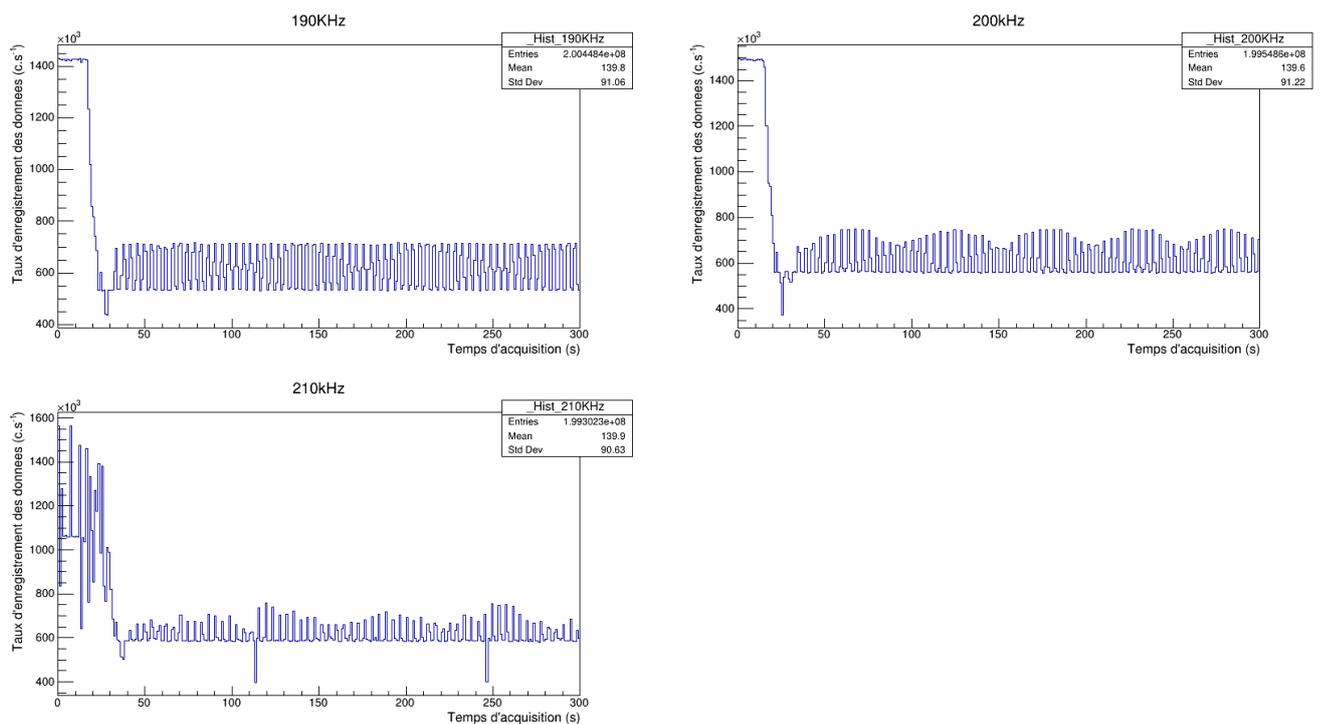


Figure 93. Diagnostic d'enregistrement des données pour 5 min d'acquisition avec l'émulateur d'impulsions selon une loi de Poisson sur les 8 voies d'acquisition du numériseur DT5730, de 190 à 210 kHz par voie.

2) Disques SSD montés en RAID0

Les mêmes mesures que précédemment ont été renouvelées avec l'ancien PC et sur lequel 4 disques SSD ont été montés en RAID0 pour optimiser la vitesse d'écriture sur disque (420 Mo/s théorique). Les résultats de ces nouvelles mesures sont présentées dans la Figure 94 suivante :

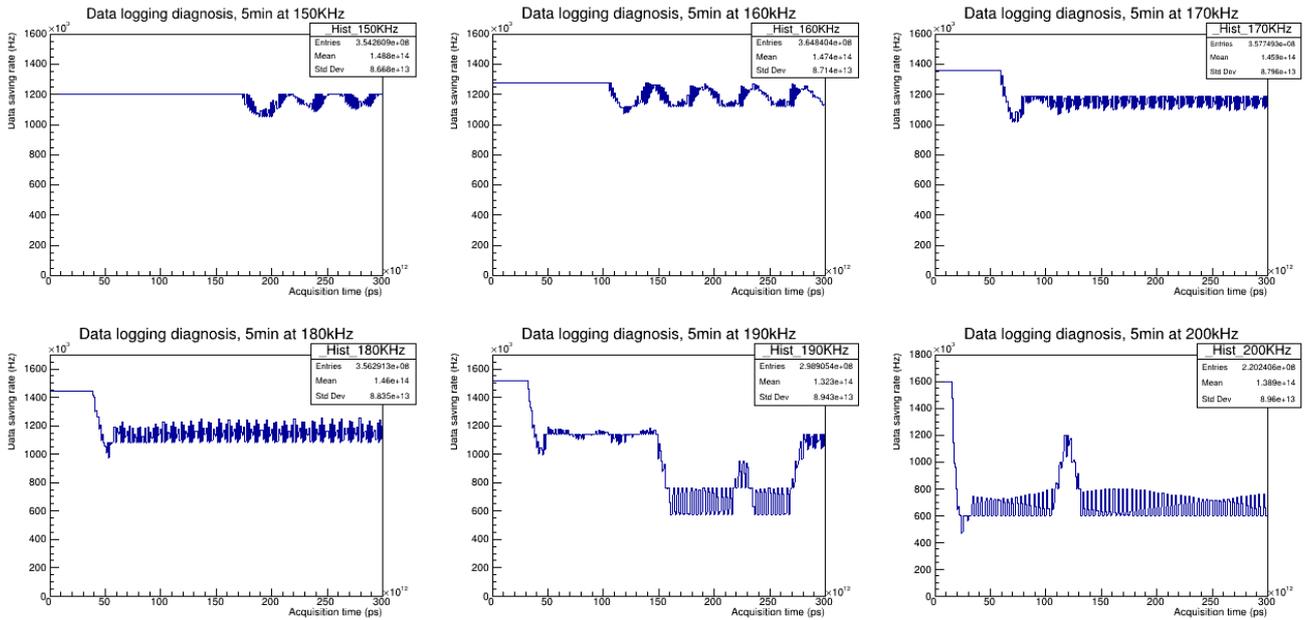


Figure 94. Taux d'enregistrement des données pour des acquisitions de 5 min avec l'émulateur d'impulsions DT5800D sur 8 voies d'acquisition du numériseur DT5730, de 150 kcps à 200 kcps par voie, avec 4 disques SSD montés en RAID0 pour l'écriture des données.

L'enregistrement des données semble meilleur avec le montage des disques en RAID0, notamment pour les acquisitions aux plus faibles taux de comptages (150 et 160 kcps par voie). Cependant, les enregistrements finissent également par devenir instables au cours du temps, d'autant plus vite que le taux de comptage est élevé. Ceci peut s'expliquer par le remplissage progressif des mémoires tampons de l'électronique qui arrivent à saturation plus rapidement. Pour analyser le comportement au niveau des voies individuelles, la Figure 95 ci-dessous représente leurs 8 histogrammes dans le cadre de l'acquisition à 170 kcps.

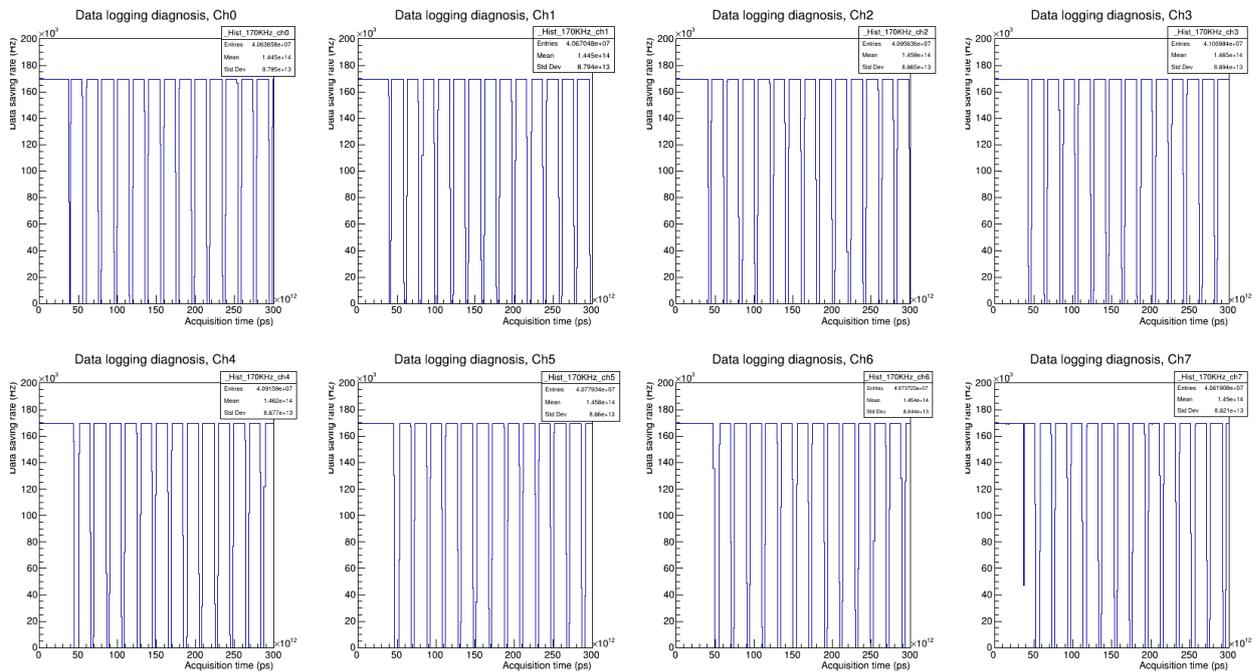


Figure 95. Diagnostic d'enregistrement des données pour chacune des voies lors de l'acquisition à 170 kcps par voie présenté en Figure 94.

Un comportement très périodique est observé pour chacune des voies avec une succession d'arrêts complets de l'enregistrement des données et de périodes d'enregistrement sans pertes. De plus, ces alternances ne sont pas synchronisées temporellement sur toutes les voies, ce qui peut expliquer les comportements périodiques observés dans les Figure 92 et Figure 93.

3) Fibre optique

Enfin, une fibre optique est testée pour optimiser le transfert des données entre le numériseur et le PC. A ce stade de l'étude, un câble non remplaçable du numériseur est devenu défectueux et nous avons poursuivi avec seulement 7 voies d'acquisition. La Figure 96 présente une acquisition réalisée avec un taux de comptage de 220 kcps sur chacune des 7 voies (ce qui aurait représenté environ 190 kcps sur 8 voies) :

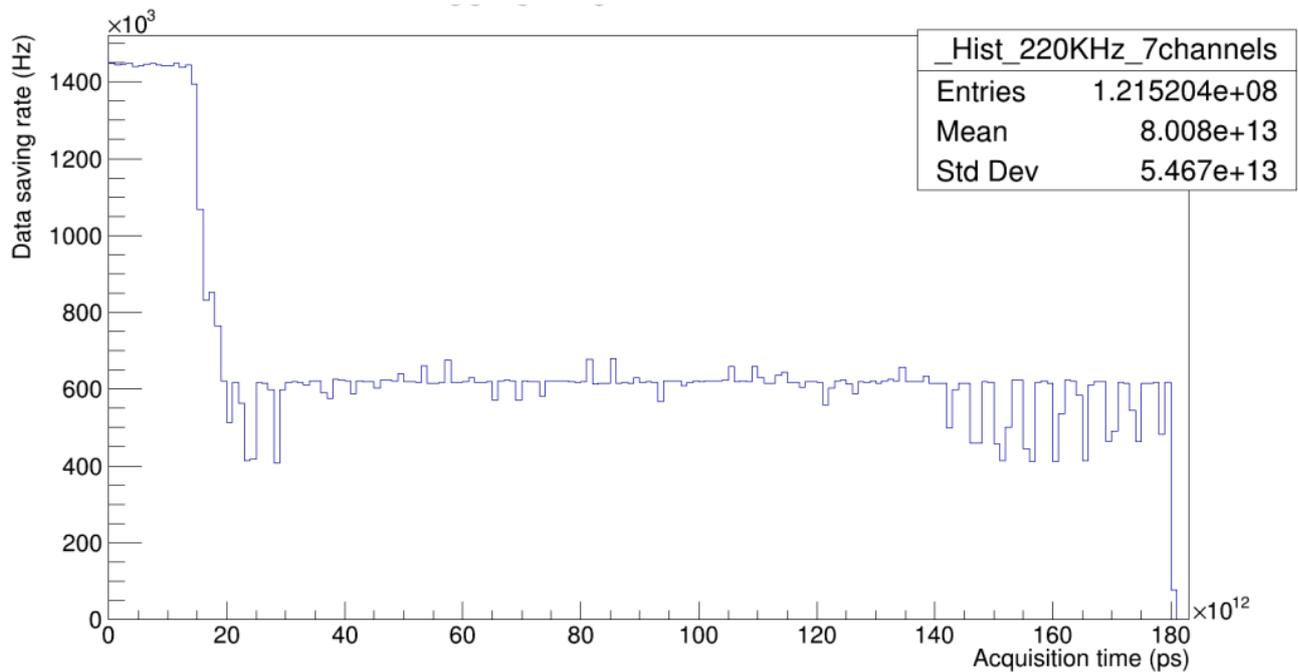


Figure 96. Taux d'enregistrement des données pour une acquisition de 3 min avec l'émulateur d'impulsions DT5800 sur 7 voies du numériseur d'impulsion DT5730, à 220 kcps pour chaque voie.

Dans ce cas de figure, la même discontinuité dans l'enregistrement des données est observée dont le taux retombe rapidement à 600 kcps, toutes voies incluses. Le problème ne provient donc pas du transfert de données vers le PC d'acquisition.

La soumission de ce travail aux ingénieurs et chercheurs de la société CAEN a permis de montrer que le facteur limitant est en réalité le logiciel CoPASS, qui dans sa version 1.1.0, ne pouvait tolérer qu'un maximum de 1 Mcps toutes voies incluses. Il serait intéressant d'effectuer de nouveau ces tests avec les nouvelles versions développées de CoPASS (1.4.0 par exemple), ou bien en intervenant directement dans le logiciel pour limiter le nombre d'opérations lourdes et chronophages inutiles à nos travaux, comme la PSD.

ANNEXE 4 : RESULTATS DETAILLES DE LA COMPARAISON EXPERIENCE/CALCUL AVEC LES MESURES DES SOURCES SEPARÉES

Tableau 68. Comparaison expérience calcul pour une source de ²⁵²Cf au centre de la matrice métallique ou organique.

	Matrice métallique				Matrice organique			
	²⁵² Cf (n°3), 5 min (simulation)		²⁵² Cf (n°3), 30 min (expérience)		²⁵² Cf (n°3), 5 min (simulation)		²⁵² Cf (n°3), 30 min (expérience)	
	R+A	A	R+A	A	R+A	A	R+A	A
M0	13 207 565 ± 3 634	18 131 841 ± 4258	81 366 258 ± 11 023	100 114 632 ± 11 918	9 495 130 ± 3 081	10 952 619 ± 3 309	68 403 251 ± 10 235	78 170 166 ± 10 783
M1	3 947 428 ± 1 987	65 297 ± 256	16 411 343 ± 4 255	569 514 ± 783	1 325 137 ± 1 151	30 773 ± 175	9 167 636 ± 3 285	407 664 ± 666
M2	896 934 ± 947	17 636 ± 133	2 666 258 ± 1 665	101 791 ± 323	152 225 ± 390	4 425 ± 67	975 339 ± 1 045	52 168 ± 233
M3	146 698 ± 383	3 549 ± 60	325 531 ± 589	14 860 ± 123	14 634 ± 121	530 ± 23	83 459 ± 333	5 270 ± 74
M4	18 343 ± 135	526 ± 23	30 822 ± 190	1 720 ± 42	1 177 ± 34	50 ± 7	5 816 ± 112	510 ± 23
M5	1 791 ± 42	78 ± 9	2 337 ± 66	145 ± 12	90 ± 9	1 ± 1	328 ± 54	44 ± 7
M6	156 ± 12	6 ± 2	125 ± 34	11 ± 4	5 ± 2	0	-8 ± 35	3 ± 2
M7	16 ± 4	0	20 ± 23	5 ± 2	0	0	13 ± 26	2 ± 1
M8	2 ± 1	0	-10 ± 16	5 ± 2	0	0	-11 ± 19	0
M9	0	0	2 ± 13	0	0	0	-4 ± 15	0
M10	0	0	0 ± 10	1 ± 1	0	0	7 ± 12	0
M11	0	0	-1 ± 8	0	0	0	4 ± 10	1 ± 1
M12	0	0	-1 ± 6	0	0	0	8 ± 8	0
M13	0	0	0 ± 5	0	0	0	2 ± 6	0
M14	0	0	2 ± 4	0	0	0	2 ± 5	0
M15	0	0	-3 ± 3	0	0	0	7 ± 4	0
S	18 218 933 ± 7 145 6,07.10⁴ s⁻¹		100 802 683 ± 17 910 5,60.10⁴ s⁻¹		10 988 398 ± 4 788 3,66.10⁴ s⁻¹		78 635 828 ± 15 204 4,37.10⁴ s⁻¹	
D	6 151 035 ± 6 739 2,05.10⁴ s⁻¹		22 030 792 ± 13 568 1,22.10⁴ s⁻¹		1 637 259 ± 2 898 5,46.10³ s⁻¹		10 863 761 ± 9 816 6,04.10³ s⁻¹	
T	1 397 016 ± 4 258 (4,66 ± 0,01).10³ s⁻¹		3 533 821 ± 10 903 (1,96 ± 0,01).10³ s⁻¹		191 668 ± 1 287 (6,39 ± 0,04).10² s⁻¹		1 127 349 ± 9 200 (6,26 ± 0,05).10² s⁻¹	

Tableau 69. Comparaison expérience calcul pour la source AmBe au centre de la matrice métallique ou organique.

	Matrice métallique				Matrice organique			
	AmBe, 5 min (simulation)		AmBe, 30 min (expérience)		AmBe, 5 min (simulation)		AmBe, 30 min (expérience)	
	R+A	A	R+A	A	R+A	A	R+A	A
M0	23 188 307 ± 4 815	24 929 918 ± 4 993	121 379 175 ± 12 709	129 397 307 ± 13 089	16 981 325 ± 4 121	18 192 728 ± 4 265	99 162 827 ± 11 641	105 964 584 ± 12 003
M1	1 832 944 ± 1 354	182 394 ± 427	8 654 743 ± 3 218	1 076 934 ± 1 058	1 246 037 ± 1 116	95 905 ± 310	7 130 995 ± 2 959	736 737 ± 879
M2	99 773 ± 316	13 333 ± 115	495 242 ± 775	78 521 ± 285	65 835 ± 257	7 626 ± 87	439 199 ± 746	55 202 ± 239
M3	5 270 ± 73	882 ± 30	27 722 ± 221	5 286 ± 74	3 343 ± 58	418 ± 20	26 159 ± 232	3 840 ± 63
M4	269 ± 16	51 ± 7	1 639 ± 83	399 ± 21	155 ± 12	27 ± 5	1 440 ± 91	296 ± 18
M5	17 ± 4	1 ± 1	75 ± 46	39 ± 7	10 ± 3	1 ± 1	61 ± 51	22 ± 5
M6	1 ± 1	0	-7 ± 31	6 ± 3	0	0	16 ± 35	3 ± 2
M7	0	2 ± 1	-31 ± 22	6 ± 2	0	0	17 ± 26	4 ± 2
M8	0	0	-5 ± 17	6 ± 2	0	0	0 ± 19	2 ± 1
M9	0	0	-9 ± 13	0	0	0	-3 ± 15	2 ± 1
M10	0	0	-16 ± 9	0	0	0	2 ± 12	0
M11	0	0	-5 ± 7	1 ± 1	0	0	6 ± 10	0
M12	0	0	-5 ± 6	0	0	0	-4 ± 7	0
M13	0	0	-3 ± 5	0	0	0	-2 ± 6	0
M14	0	0	-5 ± 3	2 ± 1	0	0	-2 ± 4	0
M15	0	0	-4 ± 2	0	0	0	2 ± 4	0
S	25 126 581 ± 6 263 8,38.10⁴ s⁻¹		130 558 506 ± 17 167 7,25.10⁴ s⁻¹		18 296 705 ± 5 567 6,10.10⁴ s⁻¹		106 760 690 ± 15 858 5,93.10⁴ s⁻¹	
D	1 837 538 ± 2 356 6,13.10³ s⁻¹		8 482 721 ± 9 018 4,71.10³ s⁻¹		1 275 882 ± 2 436 4,25.10³ s⁻¹		7 234 101 ± 8 639 4,02.10³ s⁻¹	
T	85 363 ± 452 (2,85 ± 0,02).10² s⁻¹		406 406 ± 7 445 (2,26 ± 0,04).10² s⁻¹		59 995 ± 747 (2,00 ± 0,02).10² s⁻¹		399 617 ± 8 220 (2,22 ± 0,05).10² s⁻¹	

Tableau 70. Comparaison expérience calcul pour la source de ^{60}Co posée au-dessus de la matrice métallique ou organique.

	Matrice métallique				Matrice organique			
	^{60}Co , 5 min (simulation)		^{60}Co , 30 min (expérience)		^{60}Co , 5 min (simulation)		^{60}Co , 30 min (expérience)	
	R+A	A	R+A	A	R+A	A	R+A	A
M0	2551002 2 $\pm 5\ 051$	26883852 $\pm 5\ 185$	197069765 $\pm 15\ 401$	204861907 $\pm 15\ 709$	27090861 $\pm 5\ 205$	28559665 $\pm 5\ 344$	227408452 $\pm 16\ 241$	236856721 $\pm 16\ 582$
M1	1 544 562 $\pm 1\ 243$	204 085 ± 452	10041556 $\pm 3\ 426$	2 455 589 $\pm 1\ 581$	1 662 595 $\pm 1\ 289$	230 700 ± 480	11858698 $\pm 3\ 672$	2653709 $\pm 1\ 640$
M2	51 559 ± 227	19 558 ± 140	366 634 ± 687	169 235 ± 415	57 620 ± 240	22 184 ± 149	393 599 ± 715	162 789 ± 406
M3	1 890 \pm 43	583 \pm 24	14 111 ± 188	5 520 \pm 75	2 138 \pm 46	700 \pm 26	15 683 ± 208	4 738 \pm 70
M4	63 \pm 8	18 \pm 4	594 \pm 77	357 \pm 20	66 \pm 8	29 \pm 5	1 308 ± 90	325 \pm 19
M5	0	0	33 \pm 45	41 \pm 7	0	2 \pm 1	317 \pm 53	49 \pm 8
M6	0	0	-12 \pm 31	13 \pm 4	0	0	117 \pm 36	15 \pm 4
M7	0	0	9 \pm 23	0	0	0	99 \pm 27	8 \pm 3
M8	0	0	-9 \pm 17	1 \pm 1	0	0	30 \pm 20	2 \pm 1
M9	0	0	1 \pm 13	5 \pm 2	0	0	24 \pm 16	0
M10	0	0	-3 \pm 10	2 \pm 1	0	0	21 \pm 13	2 \pm 1
M11	0	0	-10 \pm 7	0	0	0	12 \pm 10	0
M12	0	0	-2 \pm 6	0	0	0	6 \pm 8	1 \pm 1
M13	0	0	5 \pm 5	0	0	0	5 \pm 7	0
M14	0	0	2 \pm 4	1 \pm 1	0	0	4 \pm 5	1 \pm 1
M15	0	0	-3 \pm 3	1 \pm 1	0	0	6 \pm 4	0
S	27 108 096 \pm 6 572 $9,04 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$		207 492 671 \pm 19 943 $1,15 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$		28 813 280 \pm 6 788 $9,60 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$		239 678 360 \pm 21 125 $1,33 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$	
D	1 408 580 \pm 2 678 $4,70 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		8 007 089 \pm 9 752 $4,45 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		1 507 219 \pm 2 820 $5,02 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		9 706 975 \pm 10 484 $5,39 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$	
T	23 460 \pm 652 $(7,82 \pm 0,22) \cdot 10^1 \text{ s}^{-1}$		114 505 \pm 7 591 $(6,36 \pm 0,42) \cdot 10^1 \text{ s}^{-1}$		25 447 \pm 705 $(8,48 \pm 0,24) \cdot 10^1 \text{ s}^{-1}$		159 227 \pm 8 911 $(8,85 \pm 0,50) \cdot 10^1 \text{ s}^{-1}$	

Tableau 71. Comparaison expérience calcul pour les 4 plaquettes de plutonium « au centre » (voir texte) de la matrice métallique et de la matrice organique.

	Matrice métallique				Matrice Organique			
	4 plaquettes Pu (simulation, 5 min)		4 plaquettes Pu (mesure, 30 min)		4 plaquettes Pu (simulation, 5 min)		4 plaquettes Pu (mesure, 30 min)	
	R+A	A	R+A	A	R+A	A	R+A	A
M0	293085 ± 541	351292 ± 593	2910981 ± 6 439	3767087 ± 6 571	159160 ± 399	177565 ± 421	3207791 ± 6 290	3430377 ± 6 444
M1	51 259 ± 226	56 ± 7	785 043 ± 1 266	17 337 ± 191	16 568 ± 129	16 ± 4	215 100 ± 1 356	7 268 ± 208
M2	6 435 ± 80	5 ± 2	70 489 ± 281	1 468 ± 46	1 249 ± 35	2 ± 1	14 562 ± 363	532 ± 51
M3	549 ± 23	1 ± 1	13 363 ± 145	104 ± 12	81 ± 9	0	856 ± 168	28 ± 13
M4	26 ± 5	0	3 311 ± 67	20 ± 5	5 ± 2	0	69 ± 83	0 ± 6
M5	0	0	1 311 ± 39	4 ± 2	0	0	-74 ± 50	-2 ± 2
M6	0	0	648 ± 26	2 ± 1	0	0	-24 ± 34	1 ± 2
M7	0	0	361 ± 19	1 ± 1	0	0	-20 ± 25	1 ± 1
M8	0	0	203 ± 14	1 ± 1	0	0	-19 ± 19	0
M9	0	0	125 ± 11	0	0	0	-15 ± 15	0
M10	0	0	75 ± 9	0	0	0	3 ± 12	0
M11	0	0	46 ± 7	0	0	0	-10 ± 9	0
M12	0	0	31 ± 6	0	0	0	-7 ± 7	0
M13	0	0	21 ± 5	0	0	0	1 ± 6	0
M14	0	0	12 ± 3	0	0	0	9 ± 5	0
M15	0	0	7 ± 3	0	0	0	4 ± 4	0
S	351 354 ± 875 1,17.10³ s⁻¹		3 786 024 ± 8 340 2,10.10³ s⁻¹		234 971 ± 574 (7,83 ± 0,02).10² s⁻¹		3 438 205 ± 8 446 1,91.10³ s⁻¹	
D	65 811 ± 544 (2,19 ± 0,02).10² s⁻¹		976 522 ± 3 987 (5,43 ± 0,02).10² s⁻¹		19 309 ± 242 6,44.10¹ s⁻¹		237 734 ± 4 747 (1,32 ± 0,03).10² s⁻¹	
T	8 217 ± 200 (2,74 ± 0,07).10¹ s⁻¹		175 094 ± 5 531 (9,73 ± 0,31).10¹ s⁻¹		1 518 ± 78 (5,06 ± 2,60) s⁻¹		14 178 ± 7 027 (7,88 ± 3,90) s⁻¹	

Tableau 72. Correction de la mesure du plutonium avec le bruit de fond mesuré le 24 février 2021, en présence de la matrice métallique et de l'écran de plomb de 5 cm.

	4 plaquettes Pu, mesure brute de 30 min (30/03/21)		4 plaquettes Pu, signal net après soustraction du bruit de fond du 24/02	
	R+A	A	R+A	A
M0	22 188 491 ± 4 710	23 471 381 ± 3 531	2 122 162 ± 6 500	2 510 782 ± 6 666
M1	1 194 353 ± 1 093	26 969 ± 164	345 475 ± 1 429	5 437 ± 220
M2	93 407 ± 306	1 796 ± 42	40 446 ± 383	469 ± 56
M3	17 140 ± 131	124 ± 11	6 490 ± 167	37 ± 15
M4	3 917 ± 63	23 ± 5	1 251 ± 81	5 ± 6
M5	1 436 ± 38	5 ± 2	431 ± 49	1 ± 3
M6	672 ± 26	2 ± 2	192 ± 34	1 ± 2
M7	366 ± 19	1 ± 1	112 ± 25	1 ± 1
M8	204 ± 14	1 ± 1	63 ± 19	1 ± 1
M9	125 ± 11	0	42 ± 14	0
M10	75 ± 9	0	26 ± 11	0
M11	46 ± 7	0	17 ± 9	0
M12	31 ± 6	0	12 ± 7	0
M13	21 ± 5	0	9 ± 6	0
M14	12 ± 3	0	5 ± 4	0
M15	7 ± 3	0	2 ± 3	0
S	23 500 302 ± 6 443 1,31.10⁴ s⁻¹		2 516 734 ± 8 742 1,40.10³ s⁻¹	
D	1 435 878 ± 3 753 (7,98 ± 0,02).10² s⁻¹		450 096 ± 4 843 (2,50 ± 0,03).10² s⁻¹	
T	217 749 ± 5 340 (1,21 ± 0,03).10² s⁻¹		82 652 ± 6 901 (4,59 ± 0,38).10¹ s⁻¹	

ANNEXE 5 : RESULTATS DETAILLES DE LA COMPARAISON EXPERIENCE/CALCUL POUR LES MESURES DES SOURCES ENSEMBLE

La mesure du plutonium dans des conditions réalistes nécessite de réaliser des mesures avec les sources signal et sources parasites ensemble. Le Tableau 73 et le Tableau 74 suivant permettent de comparer simulations et mesures, pour la matrice métallique et la matrice organique respectivement, lorsque celles-ci impliquent la source AmBe et la source de ^{60}Co en présence de la source ^{252}Cf .

Tableau 73. Comparaison expérience/calcul pour des combinaisons d'une source de ^{252}Cf avec les sources d'AmBe et de ^{60}Co , dans le cas de la matrice métallique.

	^{252}Cf (n°3) + AmBe				^{252}Cf (n°3) + AmBe + ^{60}Co			
	Simulation (5 min)		Mesure (30 min)		Simulation (5 min)		Mesure (30 min)	
	R+A	A	R+A	A	R+A	A	R+A	A
M0	36177960 ± 6 015	42777124 ± 6 540	202379257 ± 15 573	229272838 ± 16 468	61028813 ± 7 812	68880105 ± 8 299	393658434 ± 20 828	427436790 ± 21 665
M1	5 906 514 ± 2 430	464 028 ± 681	26 151 667 ± 5 277	2 718 590 ± 1 662	7 890 548 ± 2 809	1 267 200 ± 1 126	39 219 808 ± 6 37	9258973 ± 3 050
M2	1 046 341 ± 1 023	64 366 ± 254	3 390 925 ± 1 870	325 938 ± 573	1 199 593 ± 1 095	158 156 ± 398	4 311 836 ± 2 102	929 265 ± 965
M3	163 706 ± 405	10 072 ± 100	395 476 ± 646	39 136 ± 198	182 648 ± 427	18 974 ± 138	478 297 ± 707	86 436 ± 294
M4	20 445 ± 143	1 436 ± 38	38 746 ± 210	4 276 ± 66	23 106 ± 152	2 584 ± 51	46 807 ± 228	8 757 ± 94
M5	2 066 ± 45	175 ± 13	3 927 ± 77	391 ± 20	2 404 ± 49	309 ± 18	4 530 ± 81	797 ± 28
M6	176 ± 13	18 ± 4	695 ± 41	42 ± 7	234 ± 15	37 ± 6	721 ± 41	71 ± 9
M7	12 ± 3	2 ± 1	265 ± 28	14 ± 4	20 ± 4	1 ± 1	290 ± 28	13 ± 4
M8	1 ± 1	0	132 ± 20	10 ± 3	0	0	159 ± 21	4 ± 2
M9	0	0	72 ± 15	4 ± 2	0	0	100 ± 16	4 ± 2
M10	0	0	32 ± 11	4 ± 2	0	0	56 ± 12	2 ± 1
M11	0	0	25 ± 9	2 ± 1	0	0	38 ± 10	2 ± 1
M12	0	0	13 ± 7	0	0	0	17 ± 7	0
M13	0	0	10 ± 6	2 ± 1	0	0	10 ± 6	0
M14	0	0	3 ± 4	0	0	0	8 ± 5	0
M15	0	0	4 ± 4	0	0	0	5 ± 4	0
S	43 317 221 ± 10 079 $1,44 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$		232 361 247 ± 23 698 $1,29 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$		70 327 366 ± 12 365 $2,34 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$		437 721 114 ± 30 493 $2,43 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$	
D	7 953 855 ± 8 344 $2,65 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$		30 795 781 ± 17 515 $1,71 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$		9 291 122 ± 9 927 $3,10 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$		38 081 817 ± 21 838 $2,12 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$	
T	1 578 449 ± 5 083 $5,26 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		4 401 811 ± 14 243 $2,45 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		1 679 895 ± 5 665 $5,60 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		4 854 706 ± 14 895 $2,70 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$	

Tableau 74. Comparaison expérience/calcul pour des combinaisons d'une source de ²⁵²Cf avec les sources d'AmBe et de ⁶⁰Co, dans le cas de la matrice organique.

	²⁵² Cf (n°3) + AmBe				²⁵² Cf (n°3) + AmBe + ⁶⁰ Co			
	Simulation (5 min)		Mesure (30 min)		Simulation (5 min)		Mesure (30 min)	
	R+A	A	R+A	A	R+A	A	R+A	A
M0	26363056 ± 5 134	29012638 ± 5 386	167004564 ± 14 261	183417225 ± 14 883	52955450 ± 7 277	56998964 ± 7 550	345155172 ± 19 532	368560198 ± 20 166
M1	2 649 913 ± 1 628	231 277 ± 481	16 830 642 ± 4 296	1 867 207 ± 1 380	4 668 308 ± 2 161	912 521 ± 955	28 844 735 ± 5 520	7 201 110 ± 2 690
M2	235 482 ± 485	24 296 ± 156	1 523 495 ± 1 281	189 632 ± 438	357 921 ± 598	94 830 ± 308	2 235 853 ± 1 534	616 077 ± 786
M3	20 375 ± 143	2 118 ± 46	124 251 ± 389	16 699 ± 130	28 831 ± 170	6 098 ± 78	174 078 ± 449	42 339 ± 206
M4	1 565 ± 40	178 ± 13	8 845 ± 125	1 435 ± 38	2 175 ± 47	424 ± 21	12 486 ± 139	3 284 ± 58
M5	126 ± 11	14 ± 4	514 ± 55	110 ± 11	183 ± 14	37 ± 6	851 ± 58	235 ± 16
M6	7 ± 3	2 ± 1	29 ± 35	15 ± 4	8 ± 3	2 ± 1	64 ± 36	29 ± 6
M7	0	1 ± 1	15 ± 26	3 ± 2	0	0	28 ± 26	13 ± 4
M8	0	0	24 ± 20	5 ± 2	0	0	19 ± 20	9 ± 3
M9	0	0	-10 ± 15	0	0	0	16 ± 15	4 ± 2
M10	0	0	4 ± 12	0	0	0	6 ± 12	3 ± 2
M11	0	0	-11 ± 9	1 ± 1	0	0	4 ± 10	0
M12	0	0	-4 ± 7	0	0	0	3 ± 8	2 ± 1
M13	0	0	-1 ± 6	0	0	0	2 ± 6	0
M14	0	0	-4 ± 4	0	0	0	8 ± 5	0
M15	0	0	0 ± 3	0	0	0	0 ± 3	1 ± 1
S	29 270 524 ± 7 444 9,76.10⁴ s⁻¹		185 492 332 ± 20 544 1,04.10⁵ s⁻¹		58 012 876 ± 10 269 1,93.10⁵ s⁻¹		376 423 304 ± 27 373 2,09.10⁵ s⁻¹	
D	2 901 910 ± 4 275 9,67.10³ s⁻¹		17 985 489 ± 12 894 9,99.10³ s⁻¹		4 357 938 ± 6 064 1,46.10⁴ s⁻¹		25 318 985 ± 17 342 1,41.10⁴ s⁻¹	
T	275 453 ± 1 823 9,18.10² s⁻¹		1 704 429 ± 10 146 9,47.10² s⁻¹		343 346 ± 2 356 1,14.10³ s⁻¹		2 079 079 ± 11 920 1,16.10³ s⁻¹	

Tableau 75. Comptages dans les régions d'intérêts des histogrammes 2D (10 ns ≤ Δ₂₋₁ ≤ 30 ns et 10 ns ≤ Δ₂₋₁ ≤ 30 ns) pour les mesures et simulations de 5 min avec sources de ²⁵²Cf et d'AmBe.

	²⁵² Cf + AmBe				²⁵² Cf + AmBe + ⁶⁰ Co			
	Mesure (net BDF)	Simulation	Mesure (net BDF)	Simulation	Mesure (net BDF)	Simulation	Mesure (net BDF)	Simulation
Sans rejet de diaphonie	34 803 ± 189	39 290 ± 198	127 690 ± 359	275 050 ± 524	41 010 ± 205	44 511 ± 211	138 900 ± 374	289 506 ± 538
Δt ≤ 30 ns	17 771 ± 135	17 879 ± 134	72 065 ± 269	142 545 ± 378	20 711 ± 145	20 389 ± 143	77 538 ± 279	149 621 ± 387
Δt ≤ 60 ns	15 655 ± 126	15 652 ± 125	62 608 ± 251	122 495 ± 350	18 106 ± 136	17 756 ± 133	67 208 ± 260	128 427 ± 358

ANNEXE 6 : EVALUATION DE DIVERSES INCERTITUDES DE MODELISATION

Dans le corps du manuscrit, plusieurs éléments ont été évoqués quant aux causes possibles des écarts expérience/calcul observés lors des mesures avec les matrices dans le fût maquette, notamment leur densité qui peut avoir un impact significatif sur la thermalisation des neutrons rapides (matrice organique) ou l'absorption des rayonnements gamma (matrice métallique). Cette annexe présente des simulations avec des valeurs de densité qui encadrent les valeurs mesurées ($0,5 \pm 0,1$ pour la matrice métallique et $0,3 \pm 0,05$ pour la matrice organique). Le Tableau 76 ci-dessous présente la simulation d'une mesure de 5 min avec la source d'activité intermédiaire de ^{252}Cf (n°2) au centre de la matrice métallique. Les fenêtres utilisées pour le registre à décalage sont les premières utilisées dans le cadre de ce manuscrit, à savoir la fenêtre (R+A) de 0 à 100 ns et (A) de 1000 à 1100 ns.

Tableau 76. Simulation de l'effet de la densité pour une mesure de 5 min avec une source de ^{252}Cf au centre de la matrice métallique.

	^{252}Cf (n°3), 5 min d = 0,4		^{252}Cf (n°3), 5 min d = 0,5		^{252}Cf (n°3), 5 min d = 0,6	
	R+A	A	R+A	A	R+A	A
M0	1348172 ± 1161	1859597 ± 1364	1334637 ± 1155	1833987 ± 1354	1320725 ± 1149	1807366 ± 1344
M1	403490 ± 635	872 ± 30	395794 ± 629	888 ± 30	387245 ± 622	882 ± 30
M2	92283 ± 304	211 ± 15	88627 ± 298	202 ± 14	85380 ± 292	183 ± 14
M3	14811 ± 122	44 ± 7	14193 ± 119	53 ± 7	13426 ± 116	24 ± 5
M4	1811 ± 43	7 ± 3	1714 ± 41	5 ± 2	1526 ± 39	2 ± 1
M5	150 ± 12	1 ± 1	156 ± 12	0	143 ± 12	0
M6	12 ± 3	0	13 ± 4	0	11 ± 3	0
M7	3 ± 2	0	1 ± 1	0	1 ± 1	0
M8	0	0	0	0	0	0
S	1 860 732 ± 2282 (6 202 ± 7,61 s⁻¹)		1 835 135 ± 2260 (6 117 ± 7,53 s⁻¹)		1 808 457 ± 2235 (6 028 ± 7,45 s⁻¹)	
D	639 117 ± 1966 (2 130 ± 6,55 s⁻¹)		621 877 ± 1928 (2 073 ± 6,43 s⁻¹)		603 847 ± 1874 (2 013 ± 6,25 s⁻¹)	
T	148 930 ± 1227 (496 ± 4,08 s⁻¹)		142 875 ± 1182 (476 ± 3,94 s⁻¹)		136 163 ± 1126 (454 ± 3,75 s⁻¹)	

Les écarts relatifs entre les singulets, doublets et triplets, pour les deux cas extrêmes, ne sont que de 3%, 5% et 8% respectivement. Ces incertitudes limitées sont un avantage en vue de l'application industrielle de la méthode mais elles ne permettent pas d'expliquer, à elles seules, les écarts expérience-simulation observées dans le corps du manuscrit sur les doublets et les triplets de la source ^{252}Cf au centre de cette matrice métallique (cf. Tableau 34). Compte tenu du meilleur accord pour les sources AmBe et ^{60}Co , les causes de cet écart pourraient se situer dans les données nucléaires sur la multiplicité neutronique et gamma des rayonnements prompts de fission, voire aussi dans leurs spectres en énergie.

Le Tableau 77 montre l'effet de la densité dans la matrice organique.

Tableau 77. Simulation de l'effet de la densité pour une mesure de 5 min avec une source de ^{252}Cf au centre de la matrice organique.

	^{252}Cf (n°3), 5 min d = 0,25		^{252}Cf (n°3), 5 min d = 0,3		^{252}Cf (n°3), 5 min d = 0,35	
	R+A	A	R+A	A	R+A	A
M0	1037228 ± 1018	1219584 ± 1104	962845 ± 981	1111092 ± 1054	887 363 ± 942	1 008 962 ± 1004
M1	160477 ± 401	474 ± 22	132255 ± 364	420 ± 20	109 752 ± 331	323 ± 18
M2	20184 ± 142	82 ± 9	14936 ± 122	58 ± 8	11 231 ± 106	54 ± 7
M3	2068 ± 45	4 ± 2	1426 ± 38	5 ± 2	938 ± 31	6 ± 2
M4	170 ± 13	0	110 ± 10	2 ± 1	59 ± 8	0
M5	16 ± 4	0	5 ± 2	0	2 ± 1	0
M6	1 ± 1	0	0	0	0	0
M7	0	0	0	0	0	0
M8	0	0	0	0	0	0
S	1 220 144 ± 1625 (4 067 ± 5,42 s⁻¹)		1 111 577 ± 1518 (3 705 ± 5,06 s⁻¹)		1 009 345 ± 1419 (3 364 ± 5 s⁻¹)	
D	207 165 ± 945 (691 ± 3,15 s⁻¹)		166 311 ± 823 (554 ± 2,7 s⁻¹)		134 825 ± 713 (449 ± 2 s⁻¹)	
T	27 489 ± 434 (92 ± 1,45 s⁻¹)		19 839 ± 351 (66 ± 1,17 s⁻¹)		14 347 ± 278 (48 ± 1 s⁻¹)	

L'effet de la densité est plus sensible pour cette matrice organique, en raison de son impact sur l'efficacité de détection des neutrons rapides de fission (voir §3, Tableau 30). L'écart entre les densités extrêmes est de l'ordre de 20% sur les singulets, plus de 50% sur les doublets et presque un facteur 2 sur les triplets.

Une autre cause d'incertitude est la densité apparente de la ceinture de plomb utilisée dans le système de mesure. En effet, des briques chevronnées ont été utilisées et il reste des espaces de vides entre elles (voir Figure 50) et la présence d'antimoine dans le plomb pour durcir celui-ci diminue la densité de l'alliage. Des simulations représentant des mesures de 2 min pour une source de ^{137}Cs ou ^{252}Cf ont été réalisées pour des densités qui encadrent la valeur estimée résultant de ces deux effets, soit $10,5 \pm 0,7$. Pour la source de ^{137}Cs , le Tableau 78 montre un effet important sur les singulets, doublets et triplets. En ce qui concerne la source de ^{252}Cf , les écarts sont par contre beaucoup plus faibles, de l'ordre de 5 à 10% seulement, et ne permettent pas d'expliquer les écarts importants observés entre expérience et simulation pour cette source au centre de la matrice métallique.

Tableau 78. Simulation de l'effet de la densité du plomb pour une mesure de 2 min avec une source de ^{137}Cs au centre de la matrice métallique.

	^{137}Cs , 2 min $d_{\text{Pb}} = 9,7$		^{137}Cs , 2 min $d_{\text{Pb}} = 10,5$		^{137}Cs , 2 min $d_{\text{Pb}} = 11,35$	
	R+A	A	R+A	A	R+A	A
M0	1144298 ± 1070	1195490 ± 1093	760500 ± 872	794265 ± 891	493913 ± 703	515758 ± 718
M1	51867 ± 228	987 ± 31	34014 ± 184	442 ± 21	21919 ± 148	195 ± 14
M2	393 ± 20	81 ± 9	239	49 ± 7	139 ± 11	18 ± 4
M3	0	0	4	2 ± 1	0	0
M4	0	0	1	0	0	0
S	1 196 558 $\pm 1 317$ $9,97 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		794 758 $\pm 1 075$ $6,62 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		515 971 ± 863 $4,30 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$	
D	51 504 ± 316 $4,29 \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$		33 962 ± 265 $2,83 \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$		21 966 ± 194 $1,83 \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$	
T	263 ± 31 $2,19 \text{ s}^{-1}$		179 ± 40 $1,49 \text{ s}^{-1}$		111 ± 17 $0,93 \text{ s}^{-1}$	

Tableau 79. Simulation de l'effet de la densité du plomb pour une mesure de 2 min avec une source de ^{252}Cf au centre de la matrice métallique.

	^{252}Cf , 2 min $d_{\text{Pb}} = 9,7$		^{252}Cf , 2 min $d_{\text{Pb}} = 10,5$		^{252}Cf , 2 min $d_{\text{Pb}} = 11,35$	
	R+A	A	R+A	A	R+A	A
M0	544057 ± 738	750686 ± 866	533796 ± 731	733216 ± 856	523910 ± 724	715411 ± 846
M1	162717 ± 403	358 ± 19	158087 ± 398	317 ± 18	152583 ± 391	330 ± 18
M2	37302 ± 193	96 ± 10	35 328 ± 188	89 ± 9	33376 ± 183	73 ± 9
M3	6222 ± 79	23 ± 5	5 656 ± 75	8 ± 3	5292 ± 73	13 ± 4
M4	793 ± 28	2 ± 1	699 ± 26	0	612 ± 25	0
M5	68 ± 8	0	60 ± 7	0	50 ± 7	0
M6	6 ± 2	0	3 ± 2	0	4 ± 2	0
S	751 165 $\pm 1 452$ $6,26 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		733 630 $\pm 1 428$ $6,11 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		715 827 $\pm 1 404$ $5,97 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$	
D	258 908 $\pm 1 253$ $2,16 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		248 313 $\pm 1 206$ $2,07 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		237 418 $\pm 1 167$ $1,98 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$	
T	61 103 ± 770 $5,09 \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$		56 867 ± 729 $4,74 \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$		53 201 ± 684 $4,43 \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$	

Le Tableau 80 suivant illustre l'incertitude liée à l'énergie du seuil de coupure bas utilisé à la fois expérimentalement (le seuil est d'abord fixé électroniquement en supprimant l'intense signal dû à la raie à 59,5 keV d'une source de ^{241}Am , puis lors du post-traitement des données mesurées en fixant le seuil à 100 keV après calibration en énergie) et dans les simulations. Une variation de ± 40 keV autour de 100 keV est étudiée sur les données de simulation (Tableau 80) pour prendre en compte la précision limitée de l'étalonnage à basse énergie (voir Chapitre 2). On observe des écarts significatifs et l'incertitude sur le seuil en énergie peut donc contribuer notablement aux écarts observés entre l'expérience et le calcul pour la source de ^{252}Cf .

Tableau 80. Simulation de l'effet du seuil en énergie pour une mesure de 2 min avec une source de ^{252}Cf au centre de la matrice métallique.

	^{252}Cf , 2 min		^{252}Cf , 2 min		^{252}Cf , 2 min	
	$d_{\text{Pb}} = 10,5 ; E_{\text{seuil}} = 60 \text{ keVee}$		$d_{\text{Pb}} = 10,5 ; E_{\text{seuil}} = 100 \text{ keVee}$		$d_{\text{Pb}} = 10,5 ; E_{\text{seuil}} = 140 \text{ keVee}$	
	R+A	A	R+A	A	R+A	A
M0	621913 ± 789	949367 ± 974	533796 ± 731	733216 ± 856	461719 ± 679	587476 ± 766
M1	238342 ± 488	498 ± 22	158087 ± 398	317 ± 18	105594 ± 325	256 ± 16
M2	71465 ± 267	150 ± 12	35 328 ± 188	89 ± 9	18024 ± 134	52 ± 7
M3	15407 ± 124	26 ± 5	5 656 ± 75	8 ± 3	2226 ± 47	4 ± 2
M4	2555 ± 51	7 ± 3	699 ± 26	0	221 ± 15	1 ± 1
M5	331 ± 18	0	60 ± 7	0	5 ± 2	0
M6	31 ± 6	0	3 ± 2	0	0	0
S	950 048 ± 1 745 $7,92 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		733 630 ± 1 428 $6,11 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		587 789 ± 1 202 $4,90 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$	
D	438 679 ± 1 815 $3,66 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		248 313 ± 1 206 $2,07 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		148 853 ± 846 $1,24 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$	
T	136 195 ± 1 349 $1,13 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		56 867 ± 729 $4,74 \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$		25 912 ± 416 $2,16 \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$	

ANNEXE 7 : RESULTATS DETAILLES DES MESURES AVEC LA MATRICE ORGANIQUE ET SANS ECRAN DE PLOMB

Tableau 81. Mesure de 10 min du bruit de fond avec la matrice organique et sans écran de plomb.

	Bruit de fond (matrice organique, sans plomb)							
	Sans rejet de diaphonie				Rejet de diaphonie, $\Delta t \leq 30$ ns			
	R+A (0-100 ns)	A (1000-1100 ns)	R+A (10-30 ns)	A (140-160 ns)	R+A (0-100 ns)	A (1000-1100 ns)	R+A (10-30 ns)	A (140-160 ns)
M0	7 745 589 $\pm 2 783$	8 222 504 $\pm 2 867$	8 180 790 $\pm 2 860$	8 230 800 $\pm 2 869$	7 738 668 $\pm 2 782$	7 992 739 $\pm 2 827$	7 972 173 $\pm 2 824$	8 000 750 $\pm 2 829$
M1	451 850 ± 672	9 511 \pm 98	48 740 ± 221	1 861 ± 43	251 604 ± 502	9 450 \pm 97	29 257 ± 171	1 855 \pm 43
M2	28 228 ± 168	723 \pm 27	2 768 ± 53	121 \pm 11	10 345 ± 102	462 \pm 21	1 058 \pm 33	73 \pm 9
M3	4 610 ± 68	42 \pm 6	291 \pm 17	6 \pm 2	1 320 \pm 36	24 \pm 5	121 \pm 11	3 \pm 2
M4	1 251 ± 35	7 \pm 3	83 \pm 9	1 \pm 1	429 \pm 21	5 \pm 2	40 \pm 6	0
M5	516 \pm 23	2 \pm 1	45 \pm 7	0	153 \pm 12	1 \pm 1	19 \pm 4	0
M6	268 \pm 16	0	26 \pm 5	0	81 \pm 9	0	9 \pm 3	0
M7	156 \pm 12	0	21 \pm 5	0	48 \pm 7	0	3 \pm 2	0
M8	101 \pm 10	0	6 \pm 2	0	18 \pm 4	0	0	0
M9	65 \pm 8	0	8 \pm 3	0	9 \pm 3	0	1 \pm 1	0
M10	51 \pm 7	0	3 \pm 2	0	5 \pm 2	0	0	0
M11	40 \pm 6	0	2 \pm 1	0	0	0	0	0
M12	30 \pm 5	0	3 \pm 2	0	1 \pm 1	0	0	0
M13	13 \pm 4	0	1 \pm 1	0	0	0	0	0
M14	15 \pm 4	0	0	0	0	0	0	0
M15	6 \pm 2	0	2 \pm 1	0	0	0	0	0
S	8 232 789 \pm 3 825 $1,37 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$		8 232 789 \pm 3 189 $1,37 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$		8 002 681 \pm 3 481 $1,33 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$		8 002 68 \pm 3 054 $1,33 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$	
D	524 471 \pm 2 339 $(8,74 \pm 0,04) \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$		54 135 \pm 715 $(9,02 \pm 0,01) \cdot 10^1 \text{ s}^{-1}$		269 373 \pm 1 325 $(4,49 \pm 0,02) \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$		30 065 \pm 421 $(5,01 \pm 0,07) \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$	
T	75 053 \pm 3 898 $(1,25 \pm 0,07) \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$		6 448 \pm 1 055 $(1,07 \pm 0,18) \cdot 10^1 \text{ s}^{-1}$		20 825 \pm 1 196 $(3,47 \pm 0,20) \cdot 10^1 \text{ s}^{-1}$		1 995 \pm 278 $3,33 \pm 0,46 \text{ s}^{-1}$	

Tableau 82. Ordres de multiplicités et singulets, doublets et triplets pour une mesure de 10 min en présence de la source de ^{252}Cf la plus active (n°3) et des sources parasites d'AmBe, ^{60}Co et ^{137}Cs , obtenus avec la méthode du registre à décalage et les fenêtres (R+A) de 0 à 100 ns et (A) de 1000 à 1100 ns.

	^{252}Cf (n°3)		^{252}Cf (n°3) + AmBe		^{252}Cf (n°3) + AmBe + ^{60}Co		^{252}Cf (n°3) + AmBe + ^{60}Co + ^{137}Cs	
	R+A (0-100 ns)	A (1000-1100 ns)	R+A (0-100 ns)	A (1000-1100 ns)	R+A (0-100 ns)	A (1000-1100 ns)	R+A (0-100 ns)	A (1000-1100 ns)
M0	67041779 ± 9 085	89221120 ± 10 279	122602 816 ± 11 751	150600 956 ± 12 925	687097 392 ± 26 506	769347 665 ± 28 032	1328409 216 ± 36 659	1389425 044 ± 37 495
M1	16 237 330 ± 4 140	795 778 ± 903	23 305 901 ± 4 920	2 598 814 ± 1 618	145 146 370 ± 12 085	78 114 089 ± 8 839	392 160 185 ± 19 826	346 980 524 ± 18 628
M2	4 977 094 ± 2 244	195 513 ± 903	5 772 334 ± 2 414	483 268 ± 696	28 631 393 ± 5 356	16 792 539 ± 4 098	85 590 528 ± 9 255	73 279 890 ± 8 560
M3	1 510 631 ± 1 233	62 715 ± 444	1 615 576 ± 1 275	123 822 ± 352	5 332 310 ± 2 311	2 680 372 ± 1 637	15 502 562 ± 3 938	12 695 939 ± 3 563
M4	413 486 ± 645	20 723 ± 251	420 920 ± 651	36 984 ± 192	1 036 753 ± 1 019	456 523 ± 676	2 636 409 ± 1 624	2 051 259 ± 1 432
M5	98 796 ± 316	5 910 ± 144	103 281 ± 323	10 212 ± 101	211 707 ± 461	91 429 ± 302	458 015 ± 678	345 586 ± 588
M6	20 216 ± 144	1 477 ± 77	20 876 ± 146	2 502 ± 50	41 755 ± 206	19 263 ± 139	81 476 ± 286	62 592 ± 250
M7	3 622 ± 63	285 ± 38	3 715 ± 63	513 ± 23	7 500 ± 88	3 878 ± 62	14 058 ± 120	11 615 ± 108
M8	532 ± 27	53 ± 17	548 ± 27	101 ± 10	1 211 ± 38	654 ± 26	2 160 ± 49	2 073 ± 46
M9	89 ± 15	5 ± 7	69 ± 14	13 ± 4	175 ± 17	123 ± 11	305 ± 21	320 ± 18
M10	6 ± 10	2 ± 2	-7 ± 10	0	15 ± 11	24 ± 5	35 ± 12	67 ± 8
M11	-3 ± 9	4 ± 1	-8 ± 8	2 ± 1	-2 ± 9	6 ± 2	-1 ± 9	16 ± 4
M12	-2 ± 8	0 ± 2	-3 ± 8	0	-10 ± 7	0	-2 ± 8	8 ± 3
M13	12 ± 6	0	6 ± 6	2 ± 1	1 ± 6	1 ± 1	3 ± 5	1 ± 1
M14	-3 ± 5	0	-5 ± 5	0	3 ± 5	3 ± 2	-7 ± 5	3 ± 2
M15	0 ± 3	0	-2 ± 3	0	1 ± 4	3 ± 2	2 ± 5	1 ± 1
S	90 303 585 ± 17 953 $1,51 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$		153 857 189 ± 21 625 $2,56 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$		867 506 574 ± 48 130 $1,45 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$		1 824 854 944 ± 72 498 $3,04 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$	
D	31 524 378 ± 22 601 $5,25 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$		37 942 732 ± 25 879 $6,32 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$		101 753 015 ± 66 791 $1,70 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$		81 253 791 ± 121 769 $1,35 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$	
T	12 255 477 ± 25 843 $2,04 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$		12 330 974 ± 27 461 $2,06 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$		3 002 603 ± 48 412 $(5,00 \pm 0,08) \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		1 563 180 ± 59 439 $(2,61 \pm 0,10) \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$	

Tableau 83. Ordres de multiplicités et singulets, doublets et triplets pour une mesure de 10 min avec la source de ^{252}Cf la plus active (n°3) et les sources parasites d'AmBe, ^{60}Co et ^{137}Cs , obtenus avec la méthode du registre à décalage le les fenêtres (R+A) de 10 à 30 ns et (A) de 140 à 160 ns.

	^{252}Cf (n°3)		^{252}Cf (n°3) + AmBe		^{252}Cf (n°3) + AmBe + ^{60}Co		^{252}Cf (n°3) + AmBe + ^{60}Co + ^{137}Cs	
	R+A (10-30 ns)	A (140-160 ns)	R+A (10-30 ns)	A (140-160 ns)	R+A (10-30 ns)	A (140-160 ns)	R+A (10-30 ns)	A (140-160 ns)
M0	81564 240 $\pm 9\ 851$	90052 167 $\pm 10\ 321$	142085 205 $\pm 12\ 553$	153170 015 $\pm 13\ 024$	831877 796 $\pm 29\ 110$	847896 836 $\pm 29\ 400$	1715710 579 $\pm 41\ 618$	1733690 317 $\pm 41\ 835$
M1	7395940 $\pm 2\ 881$	213058 ± 466	10319643 $\pm 3\ 350$	604 727 ± 780	31097147 $\pm 5\ 657$	17146386 $\pm 4\ 141$	98571191 $\pm 9\ 933$	82968626 $\pm 9\ 109$
M2	1095536 $\pm 1\ 073$	30 192 ± 174	1 195 810 $\pm 1\ 119$	66 794 ± 259	3 993 019 $\pm 2\ 012$	2 233 781 $\pm 1\ 495$	9 558 666 $\pm 3\ 093$	7 523 498 $\pm 2\ 743$
M3	190 942 ± 447	6 379 \pm 80	198 781 ± 456	12 288 ± 111	452 646 ± 680	203 626 ± 451	886 142 ± 942	604 233 ± 777
M4	44 418 ± 217	1 453 \pm 38	45 164 ± 218	2 700 \pm 52	69 356 ± 268	21 660 ± 147	107 218 ± 328	58 744 ± 242
M5	10 139 ± 106	276 \pm 17	10 266 ± 106	553 \pm 24	13 716 ± 121	3 583 \pm 60	17 567 ± 133	8 032 ± 90
M6	1 972 \pm 50	48 \pm 7	1 984 \pm 50	93 \pm 10	2 425 \pm 54	596 \pm 24	3 090 \pm 56	1 268 \pm 36
M7	341 \pm 26	7 \pm 3	281 \pm 24	15 \pm 4	403 \pm 27	86 \pm 9	416 \pm 21	190 \pm 14
M8	51 \pm 16	2 \pm 1	50 \pm 16	3 \pm 2	67 \pm 16	15 \pm 4	63 \pm 8	28 \pm 5
M9	5 \pm 12	3 \pm 2	3 \pm 12	1 \pm 1	0 \pm 11	3 \pm 2	9 \pm 3	5 \pm 2
M10	0 \pm 10	0	2 \pm 10	0	-2 \pm 10	2 \pm 1	2 \pm 1	1 \pm 1
M11	-1 \pm 9	0	2 \pm 9	0	2 \pm 9	0	1 \pm 1	1 \pm 1
M12	2 \pm 8	0	-2 \pm 8	0	-1 \pm 8	0	0	1 \pm 1
M13	0 \pm 5	0	1 \pm 5	0	0 \pm 5	0	1 \pm 1	0
M14	2 \pm 6	0	1 \pm 6	0	2 \pm 6	0	1 \pm 1	0
M15	-2 \pm 3	0	-2 \pm 3	0	-2 \pm 3	0	0	0
S	90 303 585 \pm 14 720 $1,51 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$		153 857 189 \pm 17 946 $2,56 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$		867 506 574 \pm 37 998 $1,44 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$		1 824 854 944 \pm 56 139 $3,04 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$	
D	10 102 737 \pm 10 339 $1,68 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$		12 764 465 \pm 11 613 $2,13 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$		18 471 296 \pm 24 277 $3,08 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$		20 773 024 \pm 40 293 $3,46 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$	
T	1 979 241 \pm 10 827 $(3,30 \pm 0,02) \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		2 010 281 \pm 11 256 $(3,35 \pm 0,02) \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		2 453 541 \pm 16 548 $(4,09 \pm 0,03) \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		2 160 814 \pm 18 069 $(3,60 \pm 0,03) \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$	

Tableau 84. Ordres de multiplicités et singulets, doublets et triplets pour des mesures de 10 min de la source de ^{252}Cf la plus active (n°3) et des sources parasites d'AmBe, ^{60}Co et ^{137}Cs , obtenus par la méthode du registre à décalage avec (R+A) de 10 à 30 ns et (A) de 140 à 160 ns, avec rejet de la diaphonie sur 30 ns.

	^{252}Cf (n°3)		^{252}Cf (n°3) + AmBe		^{252}Cf (n°3) + AmBe + ^{60}Co		^{252}Cf (n°3) + AmBe + ^{60}Co + ^{137}Cs	
	R+A (10-30 ns)	A (140-160 ns)	R+A (10-30 ns)	A (140-160 ns)	R+A (10-30 ns)	A (140-160 ns)	R+A (10-30 ns)	A (140-160 ns)
M0	78 141 439 ± 9 700	84 600 843 ± 10 030	137 166 966 ± 12 374	145 512 400 ± 12 709	804 148 775 ± 28 637	813 236 559 ± 28 796	1 672 914 938 ± 41 096	1 673 318 306 ± 41 101
M1	5 929 582 ± 2 447	204 485 ± 456	8 186 124 ± 2 871	585 607 ± 768	25 375 684 ± 5 043	16 813 577 ± 4 101	81 942 850 ± 9 055	81 162 692 ± 9 009
M2	660 411 ± 814	24 723 ± 158	701 623 ± 839	52 708 ± 230	2 199 741 ± 1 484	1 741 149 ± 1 320	5 332 687 ± 2 310	5 691 380 ± 2 386
M3	88 380 ± 298	4 523 ± 67	90 429 ± 301	8 453 ± 92	176 177 ± 420	118 734 ± 345	333 875 ± 578	351 699 ± 593
M4	13 784 ± 118	815 ± 29	13 786 ± 118	1 447 ± 38	19 483 ± 140	10 813 ± 104	27 614 ± 166	27 570 ± 166
M5	1 761 ± 42	114 ± 11	1 771 ± 43	231 ± 15	2 281 ± 48	1 343 ± 37	2 719 ± 53	2 946 ± 54
M6	148 ± 13	15 ± 4	159 ± 13	22 ± 5	179 ± 14	149 ± 12	233 ± 16	306 ± 17
M7	17 ± 5	4 ± 2	14 ± 4	4 ± 2	12 ± 4	7 ± 3	21 ± 5	42 ± 6
M8	2 ± 1	1 ± 1	2 ± 1	1 ± 1	2 ± 1	1 ± 1	5 ± 2	1 ± 1
M9	-1 ± 1	0	0 ± 1	1 ± 1	0 ± 1	1 ± 1	0 ± 1	0
M10	0	0	0	0	0	1 ± 1	0	0
M11	0	0	0	0	0	0	0	0
M12	0	0	0	0	0	0	0	0
M13	0	0	0	0	0	0	0	0
M14	0	0	0	0	0	0	0	0
M15	0	0	0	0	0	0	0	0
S	84 835 523 ± 13 439 $1,41 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$		146 160 874 ± 16 566 $2,44 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$		831 922 334 ± 35 794 $1,39 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$		1 760 554 942 ± 53 283 $2,93 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$	
D	7 309 043 ± 6 969 $1,22 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$		9 202 222 ± 8 062 $1,53 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$		9 691 194 ± 18 701 $1,62 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$		7,79.10 ³ ± 33 153 $(1,30 \pm 5,53) \cdot 10^1 \text{ s}^{-1}$	
T	960 416 ± 4 057 $1,60 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		940 983 ± 4 399 $1,57 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$		451 650 ± 7 790 $(7,53 \pm 0,13) \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$		-416 010 ± 10 393 $(-6,93 \pm 0,17) \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$	

ANNEXE 8 : RESULTATS DETAILLES DES MESURES AVEC L'ECRAN DE PLOMB POUR LES MATRICES METALLIQUE ET ORGANIQUE

Matrice métallique

Tableau 85. Nombres de singulets, doublets et triplets mesurés en 30 min avec la méthode du registre à décalage (taux de comptage entre parenthèses) et dans les ROI des histogrammes, pour différentes sources au centre de la matrice métallique, avec le plomb, un ratio alpha de 1,2 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.

$\alpha = 1,2$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}3)$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}3) + \text{AmBe}$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}3) + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co}$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}3) + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co} + ^{137}\text{Cs}$
Registre à décalage : (R+A) = 10-30 ns ; (A) = 140-160 ns				
S	100 724 631 ± 15 094 $5,60 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1}$	231 013 905 ± 20 084 $1,28 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$	436 373 772 ± 25 747 $2,42 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$	469 894 516 ± 25 568 $(2,61 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1})$
D	7 042 201 ± 5 576 $3,91 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$	8 472 116 ± 6 660 $4,71 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$	8 483 347 ± 8 022 $4,72 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$	8 523 057 ± 8 262 $(4,74 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1})$
T	498 131 ± 2 543 $2,77 \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$	520 886 ± 2 913 $2,89 \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$	506 003 ± 3 375 $2,81 \cdot 10^2 \text{ s}^{-1}$	501 770 ± 3 503 $(2,79 \cdot 10^2 \text{ s}^{-1})$
Comptage dans la région d'intérêt				
ROI brute	467 744 ± 686 $2,58 \cdot 10^2$	501 674 ± 710 $2,77 \cdot 10^2$	543 516 ± 739 $3,00 \cdot 10^2$	549 581 ± 743 $(3,03 \cdot 10^2)$
ROI corrigée (A _{proches})	440 373 ± 1 038 $2,45 \cdot 10^2$	448 483 ± 1 251 $2,49 \cdot 10^2$	448 811 ± 1 569 $(2,49 \cdot 10^2)$	447 563 ± 1 623 $(2,49 \cdot 10^2)$
ROI corrigée (A _{éloignées})	441 641 ± 953 $2,45 \cdot 10^2$	443 671 ± 1 183 $2,46 \cdot 10^2$	435 869 ± 1 552 $(2,42 \cdot 10^2)$	432 532 ± 1 617 $(2,40 \cdot 10^2)$

Tableau 86. Nombres de singulets, doublets et triplets mesurés en 30 min avec la méthode du registre à décalage (taux de comptage entre parenthèses) et dans les ROI des histogrammes, pour différentes sources au centre de la matrice métallique, avec le plomb, un ratio alpha de 12 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.

$\alpha = 12$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2)$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2) + \text{AmBe}$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2) + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co}$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2) + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co} + ^{137}\text{Cs}$
Registre à décalage : (R+A) = 10-30 ns ; (A) = 140-160 ns				
S	9947686 ± 8338 $(5,53 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1})$	144998407 ± 15590 $(8,06 \cdot 10^4 \text{ s}^{-1})$	313514982 ± 21091 $(1,74 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1})$	336206981 ± 21731 $(1,87 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1})$
D	710 666 ± 2 050 $(3,95 \cdot 10^2 \text{ s}^{-1})$	2 286 202 ± 3 633 $(1,27 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1})$	2 365 859 ± 4 815 $(1,31 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1})$	2 362 239 ± 5 001 $(1,31 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1})$
T	50 025 ± 1 512 $(2,78 \cdot 10^1 \text{ s}^{-1})$	78 559 ± 1 826 $(4,36 \cdot 10^1 \text{ s}^{-1})$	77 507 ± 2 048 $(4,31 \cdot 10^1 \text{ s}^{-1})$	76 153 ± 2 215 $(4,23 \cdot 10^1 \text{ s}^{-1})$
Comptage dans la région d'intérêt				
ROI brute	48 327 ± 227 $(2,49 \cdot 10^1 \text{ s}^{-1})$	63 362 ± 258 $(3,33 \cdot 10^1 \text{ s}^{-1})$	76 739 ± 283 $(4,07 \cdot 10^1 \text{ s}^{-1})$	78 661 ± 286 $(4,18 \cdot 10^1 \text{ s}^{-1})$
ROI corrigée (A _{proches})	43 619 ± 307 $(2,42 \cdot 10^1 \text{ s}^{-1})$	51 380 ± 498 $(2,85 \cdot 10^1 \text{ s}^{-1})$	53 368 ± 714 $(2,96 \cdot 10^1 \text{ s}^{-1})$	52 999 ± 747 $(2,94 \cdot 10^1 \text{ s}^{-1})$
ROI corrigée (A _{éloignées})	44 165 ± 292 $(2,45 \cdot 10^1 \text{ s}^{-1})$	50 102 ± 478 $(2,78 \cdot 10^1 \text{ s}^{-1})$	49 868 ± 723 $(2,77 \cdot 10^1 \text{ s}^{-1})$	49 789 ± 763 $(2,77 \cdot 10^1 \text{ s}^{-1})$

Tableau 87. Nombres de singulets, doublets et triplets mesurés en 30 min avec la méthode du registre à décalage (taux de comptage entre parenthèses) et dans les ROI des histogrammes, pour différentes sources au centre de la matrice métallique, avec le plomb, un ratio alpha de 59 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.

$\alpha = 59$	^{252}Cf (n°1)	^{252}Cf (n°1) + AmBe	^{252}Cf (n°1) + AmBe + ^{60}Co
Registre à décalage : (R+A) = 10-30 ns ; (A) = 140-160 ns			
S	1 182 103 ± 7 141 (6,57.10 ² s ⁻¹)	131 463 766 ± 14 770 (7,30.10 ⁴ s ⁻¹)	337 854 972 ± 21 545 (1,88.10 ⁵ s ⁻¹)
D	78 411 ± 1 196 (4,36.10 ¹ s ⁻¹)	1 556 250 ± 3 064 (8,65.10 ² s ⁻¹)	1 656 755 ± 4 680 (9,20.10 ² s ⁻¹)
T	6 344 ± 1 302 (3,52 s ⁻¹)	33 678 ± 1 638 (1,87.10 ¹ s ⁻¹)	30 778 ± 2 182 (1,71.10 ¹ s ⁻¹)
Comptage dans la région d'intérêt			
ROI brute	8 135 ± 107 (4,52 s ⁻¹)	20 689 ± 155 (9,58 s ⁻¹)	33 099 ± 191 (1,64.10 ¹ s ⁻¹)
ROI corrigée (A _{proches})	4 622 ± 138 (2,57 s ⁻¹)	11 871 ± 353 (6,60 s ⁻¹)	12 923 ± 625 (7,18 s ⁻¹)
ROI corrigée (A _{éloignées})	4 632 ± 132 (2,57 s ⁻¹)	11 076 ± 334 (6,15 s ⁻¹)	10 445 ± 641 (5,80 s ⁻¹)

Tableau 88. Nombres de singulets, doublets et triplets mesurés en 30 min avec la méthode du registre à décalage (taux de comptage entre parenthèses) et dans les ROI des histogrammes 2D, pour les plaquettes de Pu et différentes sources au centre de la matrice métallique, avec plomb, un ratio alpha de 72 et rejet de la diaphonie pendant 30 ns.

$\alpha = 72$	Plutonium (4 plaquettes)	Pu + AmBe	Pu + AmBe + ^{60}Co	Pu + AmBe + ^{60}Co + ^{137}Cs
Registre à décalage : (R+A) = 10-30 ns ; (A) = 140-160 ns				
S	3676687 ± 1594 (2,04.10 ³ s ⁻¹)	133129917 ± 14770 (7,40.10 ⁴ s ⁻¹)	317395995 ± 20898 (1,76.10 ⁵ s ⁻¹)	348700376 ± 21779 (1,94.10 ⁵ s ⁻¹)
D	90 024 ± 241 (5,00.10 ¹ s ⁻¹)	1 693 535 ± 3 052 (8,78.10 ² s ⁻¹)	1 755 163 ± 4 413 (9,75.10 ² s ⁻¹)	1 743 768 ± 4 616 (9,69.10 ² s ⁻¹)
T	9 333 ± 227 (5,18 s ⁻¹)	39 049 ± 1 487 (2,17.10 ¹ s ⁻¹)	35 136 ± 1 889 (1,95.10 ¹ s ⁻¹)	34 008 ± 1 801 (1,89.10 ¹ s ⁻¹)
Comptage dans la région d'intérêt				
ROI brute	7 020 ± 20 (3,90 s ⁻¹)	20 826 ± 148 (1,09.10 ¹ s ⁻¹)	31 737 ± 181 (1,70.10 ¹ s ⁻¹)	33 959 ± 187 (1,82.10 ¹ s ⁻¹)
ROI corrigée (A _{proches})	5 735 ± 26 (3,19 s ⁻¹)	14 010 ± 341 (7,78 s ⁻¹)	14 683 ± 583 (8,16 s ⁻¹)	15 085 ± 632 (8,38 s ⁻¹)
ROI corrigée (A _{éloignées})	5 766 ± 25 (3,20 s ⁻¹)	13 128 ± 328 (7,29 s ⁻¹)	12 534 ± 602 (6,96 s ⁻¹)	12 422 ± 653 (6,90 s ⁻¹)

Matrice Organique

Tableau 89. Nombres de singulets, doublets et triplets obtenus avec la méthode du registre à décalage, et comptages obtenus dans les régions d'intérêts des histogrammes pour les différentes configurations de 30 min de mesure. Le ratio alpha est de 1,2 et la diaphonie est rejeté sur des intervalles de 30 ns.

$\alpha = 1,2$	^{252}Cf (n°3)	^{252}Cf (n°3) + AmBe	^{252}Cf (n°3) + AmBe + ^{60}Co	^{252}Cf (n°3) + AmBe + ^{60}Co + ^{137}Cs
Registre à décalage : (R+A) = 10-30 ns ; (A) = 140-160 ns				
S	78513203 ± 12836 (4,36.10 ⁴ s ⁻¹)	185369707 ± 17396 (1,03.10 ⁵ s ⁻¹)	376300679 ± 23141 (2,09.10 ⁵ s ⁻¹)	401923359 ± 23803 (2,23.10 ⁶ s ⁻¹)
D	2770316 ± 3 609 (1,54.10 ³ s ⁻¹)	3836961 ± 4652 (2,13.10 ³ s ⁻¹)	3881305 ± 5963 (2,16.10 ³ s ⁻¹)	3842934 ± 6143 (2,13.10 ³ s ⁻¹)
T	149 402 ± 2 028 (8,30.10 ¹ s ⁻¹)	165 312 ± 2 310 (9,18.10 ¹ s ⁻¹)	160 997 ± 2 573 (8,94.10 ¹ s ⁻¹)	157 557 ± 2 681 (8,75.10 ¹ s ⁻¹)
Comptage dans la région d'intérêt				
ROI brute	112 947 ± 340 (6,12.10 ¹ s ⁻¹)	126 978 ± 360 (6,89.10 ¹ s ⁻¹)	148 370 ± 388 (8,08.10 ¹ s ⁻¹)	151 598 ± 393 (8,26.10 ¹ s ⁻¹)
ROI corrigée (A _{proches})	103 050 ± 511 (5,73.10 ¹ s ⁻¹)	106 254 ± 663 (5,90.10 ¹ s ⁻¹)	107 242 ± 940 (5,96.10 ¹ s ⁻¹)	107 747 ± 979 (5,99.10 ¹ s ⁻¹)
ROI corrigée (A _{éloignées})	102 788 ± 495 (5,71.10 ¹ s ⁻¹)	104 087 ± 665 (5,78.10 ¹ s ⁻¹)	101 434 ± 970 (5,64.10 ¹ s ⁻¹)	101 504 ± 1 017 (5,64.10 ¹ s ⁻¹)

Tableau 90. Nombres de singulets, doublets et triplets obtenus avec la méthode du registre à décalage, et comptages obtenus dans les régions d'intérêts des histogrammes pour les différentes configurations de 30 min de mesure. Le ratio alpha est de 12 et la diaphonie est rejeté sur des intervalles de 30 ns.

$\alpha = 12$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2)$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2) + \text{AmBe}$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2) + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co}$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}2) + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co} + ^{137}\text{Cs}$
Registre à décalage : (R+A) = 10-30 ns ; (A) = 140-160 ns				
S	7620917 ± 7547 (4,23.10 ³ s ⁻¹)	115813901 ± 13932 (6,43.10 ⁴ s ⁻¹)	309361225 ± 18646 (1,73.10 ⁵ s ⁻¹)	338892654 ± 21411 (1,88.10 ⁵ s ⁻¹)
D	273 889 ± 1470 (1,52.10 ² s ⁻¹)	1 406 709 ± 2 936 (7,82.10 ² s ⁻¹)	1 475 811 ± 4 360 (8,20.10 ² s ⁻¹)	1 472 527 ± 4 552 (8,18.10 ² s ⁻¹)
T	14 500 ± 1 365 (8,06 s ⁻¹)	35 453 ± 1 769 (1,97.10 ¹ s ⁻¹)	32 474 ± 2 056 (1,80.10 ¹ s ⁻¹)	31 772 ± 2 030 (1,76.10 ¹ s ⁻¹)
Comptage dans la région d'intérêt				
ROI brute	12 769 ± 125 (5,50 s ⁻¹)	21 235 ± 155 (1,02.10 ¹ s ⁻¹)	31 424 ± 185 (1,59.10 ¹ s ⁻¹)	33 919 ± 191 (1,72.10 ¹ s ⁻¹)
ROI corrigée (A _{proches})	9 575 ± 162 (5,32 s ⁻¹)	14 034 ± 307 (7,80 s ⁻¹)	14 806 ± 558 (8,23 s ⁻¹)	15 522 ± 601 (8,62 s ⁻¹)
ROI corrigée (A _{éloignées})	9 645 ± 154 (5,36 s ⁻¹)	13 514 ± 315 (7,51 s ⁻¹)	12 934 ± 589 (7,19 s ⁻¹)	13 449 ± 634 (7,47 s ⁻¹)

Tableau 91. Nombres de singulets, doublets et triplets obtenus avec la méthode du registre à décalage, et comptages obtenus dans les régions d'intérêts des histogrammes pour les différentes configurations de 30 min de mesure. Le ratio alpha est de 59 et la diaphonie est rejeté sur des intervalles de 30 ns.

$\alpha = 59$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}1)$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}1) + \text{AmBe}$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}1) + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co}$	$^{252}\text{Cf} (n^{\circ}1) + \text{AmBe} + ^{60}\text{Co} + ^{137}\text{Cs}$
Registre à décalage : (R+A) = 10-30 ns ; (A) = 140-160 ns				
S	850225 ± 6723 (4,72.10 ² s ⁻¹)	109787057 ± 13562 (6,10.10 ⁴ s ⁻¹)	305246164 ± 20355 (1,70.10 ⁵ s ⁻¹)	331643833 ± 21116 (1,84.10 ⁵ s ⁻¹)
D	29 787 ± 1 037 (1,65.10 ¹ s ⁻¹)	1 167 937 ± 2 704 (6,49.10 ² s ⁻¹)	1 241 454 ± 4 173 (6,90.10 ² s ⁻¹)	1 233 548 ± 4 374 (6,85.10 ² s ⁻¹)
T	1 408 ± 1 260 (7,82.10 ⁻¹ s ⁻¹)	22 284 ± 1 606 (1,24.10 ¹ s ⁻¹)	20 122 ± 2 016 (1,12.10 ¹ s ⁻¹)	18 376 ± 2 020 (1,02.10 ¹ s ⁻¹)
Comptage dans la région d'intérêt				
ROI brute	3 403 ± 77 (1,89 s ⁻¹)	11 248 ± 117 (4,83 s ⁻¹)	20 832 ± 152 (1,02.10 ¹ s ⁻¹)	22 469 ± 158 (1,11.10 ¹ s ⁻¹)
ROI corrigée (A _{proches})	799 ± 96 (4,44.10 ⁻¹ s ⁻¹)	5 231 ± 258 (2,91 s ⁻¹)	6 550 ± 508 (3,64 s ⁻¹)	6 859 ± 546 (3,81 s ⁻¹)
ROI corrigée (A _{éloignées})	858 ± 97 (4,77.10 ⁻¹ s ⁻¹)	4 781 ± 263 (2,66 s ⁻¹)	4 888 ± 535 (2,72 s ⁻¹)	4 838 ± 582 (2,69 s ⁻¹)

Tableau 92. Nombres de singulets, doublets et triplets obtenus avec la méthode du registre à décalage, et comptages obtenus dans les régions d'intérêts des histogrammes pour les différentes configurations de 30 min de mesure. Le ratio alpha est de 72 et la diaphonie est rejeté sur des intervalles de 30 ns.

$\alpha = 72$	Plutonium (4 plaquettes)	Pu + AmBe	Pu + AmBe + ⁶⁰ Co	Pu + AmBe + ⁶⁰ Co + ¹³⁷ Cs
Registre à décalage : (R+A) = 10-30 ns ; (A) = 140-160 ns				
S	3 315 580 ± 6 935 (1,85.10 ³ s ⁻¹)	110 634 167 ± 13 597 (6,15.10 ⁴ s ⁻¹)	300 981 829 ± 20 230 (1,67.10 ⁵ s ⁻¹)	327 350 955 ± 20 992 (1,82.10 ⁵ s ⁻¹)
D	40 092 ± 1 067 (2,23.10 ¹ s ⁻¹)	1 163 673 ± 2 702 (6,46.10 ² s ⁻¹)	1 242 593 ± 4 114 (6,90.10 ² s ⁻¹)	1 230 521 ± 4 320 (6,84.10 ² s ⁻¹)
T	1 674 ± 1 301 (0,93 s ⁻¹)	22 986 ± 1 605 (1,28.10 ¹ s ⁻¹)	20 623 ± 1 860 (1,15.10 ¹ s ⁻¹)	19 918 ± 1 980 (1,11.10 ¹ s ⁻¹)
Comptage dans la région d'intérêt				
ROI brute	3 807 ± 79 (7,00.10 ⁻¹ s ⁻¹)	11 653 ± 119 (5,06 s ⁻¹)	21 187 ± 154 (1,04.10 ¹ s ⁻¹)	22 293 ± 157 (1,10.10 ¹ s ⁻¹)
ROI corrigée (A _{proches})	1 198 ± 99 (6,66.10 ⁻¹ s ⁻¹)	5 651 ± 259 (3,14 s ⁻¹)	7 216 ± 504 (4,01 s ⁻¹)	6 632 ± 541 (3,68 s ⁻¹)
ROI corrigée (A _{éloignées})	1 243 ± 98 (6,91.10 ⁻¹ s ⁻¹)	5 217 (2,90 s ⁻¹)	5 803 ± 532 (3,22 s ⁻¹)	5 197 ± 572 (2,89 s ⁻¹)

Ecarts relatifs avec la mesure seule de la source de fissions spontanées, pour les deux matrices

Tableau 93. Tableau récapitulatif des écarts relatifs avec la mesure des sources de fissions seules, pour les différentes configurations de sources ensemble, avec rejet de la diaphonie sur 30 ns, pour la matrice métallique.

Ratio α	Triplets			ROI (correction « accidentelles proches »)		
	Fissions + AmBe	Fissions + AmBe + ^{60}Co	Fissions + AmBe + ^{60}Co + ^{137}Cs	Fissions + AmBe	Fissions + AmBe + ^{60}Co	Fissions + AmBe + ^{60}Co + ^{137}Cs
1,2 (^{252}Cf)	4,57 %	1,58 %	0,73 %	1,84 %	1,92 %	1,63 %
12 (^{252}Cf)	57,0 %	54,9 %	52,2 %	17,8 %	22,4 %	21,5 %
59 (^{252}Cf)	431 %	72,5 %	-	157 %	180 %	-
72 (Pu)	318 %	276 %	264 %	144 %	156 %	163 %

Ratio α	ROI (correction « accidentelles éloignées »)		
	Fissions + AmBe	Fissions + AmBe + ^{60}Co	Fissions + AmBe + ^{60}Co + ^{137}Cs
1,2 (^{252}Cf)	0,460 %	-1,31 %	-2,06 %
12 (^{252}Cf)	13,5 %	12,9 %	12,7 %
59 (^{252}Cf)	139 %	125 %	-
72 (Pu)	128 %	117 %	115 %

Tableau 94. Tableaux récapitulatifs des résultats ; Ecarts relatifs avec les mesures des seules sources de fissions, pour les différentes configurations de sources, et avec rejet de diaphonie sur 30 ns, pour la matrice organique.

Ratio α	Triplets			ROI (correction « accidentelles proches »)		
	Fissions + AmBe	Fissions + AmBe + ^{60}Co	Fissions + AmBe + ^{60}Co + ^{137}Cs	Fissions + AmBe	Fissions + AmBe + ^{60}Co	Fissions + AmBe + ^{60}Co + ^{137}Cs
1,2 (^{252}Cf)	10,6 %	7,76 %	5,46 %	3,11 %	4,07 %	4,56 %
12 (^{252}Cf)	145 %	124 %	119 %	46,7 %	54,6 %	62,1 %
59 (^{252}Cf)	>1000 %	>1000 %	>1000 %	511 %	629 %	665 %
72 (Pu)	>1000 %	>1000 %	>1000 %	372 %	502 %	454 %

Ratio α	ROI (correction « accidentelles éloignées »)		
	Fissions + AmBe	Fissions + AmBe + ^{60}Co	Fissions + AmBe + ^{60}Co + ^{137}Cs
1,2 (^{252}Cf)	1,26 %	-1,32 %	-1,25 %
12 (^{252}Cf)	40,1 %	34,1 %	39,4 %
59 (^{252}Cf)	498 %	472 %	466 %
72 (Pu)	320 %	367 %	318 %

ANNEXE 9 : LIMITES DE DETECTION

Pour compléter les limites de détection estimées dans le manuscrit au §3.6.3 pour les plaquettes de plutonium, nous présentons ici celles calculées avec les coefficients d'étalonnage (CE) correspondant à une répartition homogène du contaminant, établies grâce aux mesures d'une source de ^{252}Cf en 9 positions dans la matrice métallique ou organique (§3.3 du chapitre 3 sur les effets de localisation). A titre de comparaison, la LD avec le plutonium ou le ^{252}Cf au centre de ces matrices est aussi présentée. Toutes les LD sont exprimées ici en masse de ^{240}Pu équivalent, en convertissant l'émission neutronique de la source de ^{252}Cf dans cette unité (voir Chapitre 1, §2.1.2), c'est la masse de ^{240}Pu qui présente le même taux d'émission neutronique que la source considérée). Néanmoins, le coefficient d'étalonnage CE (signal utile par unité de masse de $^{240}\text{Pu}_{\text{éq}}$) des triplets ou des comptages dans la ROI des histogrammes 2D diffère entre ces deux types de sources, car le ^{252}Cf présente des multiplicités de neutrons et rayonnements gamma prompts de fission supérieures à celles du ^{240}Pu , voir Tableau 95 pour les neutrons.

Tableau 95. Distribution de probabilités des multiplicités neutroniques de fissions spontanées des isotopes ^{252}Cf et ^{240}Pu . P(0) est la probabilité qu'aucun neutron ne soit émis, P(1) la probabilité pour 1 neutron, P(2) pour 2 neutrons, etc. [Ensslin1991_11].

Distribution des probabilités	P(0)	P(1)	P(2)	P(3)	P(4)	P(5)	P(6)	P(7)
^{252}Cf	0,002	0,026	0,127	0,273	0,304	0,185	0,066	0,015
^{240}Pu	0,066	0,232	0,329	0,251	0,102	0,018	0,002	0

Les taux de fissions spontanées sont différents pour une même masse de ^{240}Pu équivalent, ce qui induit des écarts dans les coefficients d'étalonnage CE. De plus, les spectres en énergie des neutrons et rayonnements gamma prompts de fission émis diffèrent légèrement pour les deux sources, ce qui peut avoir un effet également sur CE. Par ailleurs, les scintillateurs au plastique PVT sont sensibles aux rayonnements gamma alors que la définition de la masse de ^{240}Pu équivalent, établie pour des compteurs à ^3He , s'applique uniquement à l'émission neutronique totale. Enfin, la géométrie des sources de ^{252}Cf est différente (quasi ponctuelle) de celle des plaquettes de plutonium (4 plaquettes alignées sur 22 cm et sujettes à une auto-absorption gamma significative). Pour toutes ces raisons, les limites de détection de la source de ^{252}Cf ou des plaquettes de Pu au centre des matrices, bien que du même ordre (voir Tableau 96), ne sont pas directement comparables. Par contre, celles de la source de ^{252}Cf au centre ou en répartition homogène le sont.

Avec la répartition homogène, les LD pour le ^{252}Cf sont de l'ordre de 0.1 g de $^{240}\text{Pu}_{\text{éq}}$ pour les deux matrices et un peu plus basses encore avec le comptage dans la ROI, de l'ordre de 0.08 g en moyenne. Pour les sources centrées, les LD sont un peu plus basses pour le ^{252}Cf que pour le plutonium (avec les explications et réserves évoquées ci-dessus quant à cette comparaison) et à nouveau légèrement meilleures pour le comptage des ROI que pour les triplets.

Il est important de noter ici que ces LD sont données uniquement vis-à-vis de la contribution du bruit de fond seul, et ne considèrent aucunement la présence de sources parasites avec le signal de fissions spontanées. Dans le cadre de mesures réalisées en laboratoire, il pourrait être possible de calculer les limites de détection lorsque la source de signal utile est en présence du bruit de fond et des sources parasites, car dans ce cas, il est possible de réaliser des mesures séparées de chaque contribution parasite (bruit de fond, AmBe, ^{60}Co et ^{137}Cs dans le cadre de la thèse), et d'intégrer chacune de ces contributions dans les calculs. Cependant, du point de vue d'une application industrielle pour la mesure d'un fût de déchets plutonifères pour lequel il serait impossible de séparer les contributions parasites des contributions utiles, le calcul des LD ne fait plus sens. Effectivement, la présence de ces sources dégrade fortement les limites obtenues avec le bruit de fond seul, mais d'une manière non-quantifiable car celles-ci ne peuvent être parfaitement soustraites au signal utile. Typiquement, les formules des calculs de LD ne sont plus valables avec les diaphonies résiduelles non-rejetées et avec les phénomènes de palier qui viennent perturber la proportionnalité des coefficients de proportionnalité à fort taux de comptage. Les LD calculées dans ce manuscrit en considération du bruit de fond seul sont données à titre indicatif, pour se donner une première idée des ordres de leurs ordres de grandeurs, et donc pour effectuer une première vérification des performances futures de la méthode en vue de son industrialisation future.

Tableau 96. Limites de détection (30 minutes de mesure) du ^{252}Cf et du plutonium (toutes deux exprimées en gramme de $^{240}\text{Pu}_{\text{éq}}$) pour une répartition homogène ou au centre des matrices métallique et organique.

	Bruit de fond (24/02/21)	Bruit de fond (29/03/21)	Bruit de fond (08/03/21)
Triplets (10-30 ; 140-160 ns)	6 372 ± 819	2 235 ± 163	6 276 ± 854
Comptage ROI (Correction accidentelles « proches »)	2 547 ± 61	985 ± 39	3 079 ± 72
LD Triplets (coups _{30min})	319 ± 21	189 ± 7	317 ± 22
LD ROI (coups _{30min})	202 ± 2	126 ± 2	222 ± 3
Répartition homogène (avec source ^{252}Cf)			
Coefficient d'étalonnage, ^{252}Cf , Triplets (coups _{30min} .g _{240Puéq} ⁻¹)	2 160 ± 126		1 696 ± 25
LD Triplets, ^{252}Cf homogène, en g	0,148 ± 0,018	0,0875 ± 0,0083	0,187 ± 0,016
Coefficient d'étalonnage, ^{252}Cf , ROI (coups _{30min} .g _{240Puéq} ⁻¹)	2 124 ± 126		1 449 ± 20
LD ROI, ^{252}Cf homogène, en g	0,0951 ± 0,0066	0,0593 ± 0,0045	0,153 ± 0,004
Source de ^{252}Cf ou plutonium au centre des matrices			
Coefficient d'étalonnage, ^{252}Cf , Triplets (en coups _{30min} .g _{240Puéq} ⁻¹)	2 678 ± 14		803 ± 11
Coefficient d'étalonnage, Pu, Triplets (en coups _{30min} .g _{240Puéq} ⁻¹)	2 980 ± 32		534 ± 14
LD Triplets, ^{252}Cf au centre, en g	0,119 ± 0,008	0,0707 ± 0,0034	0,395 ± 0,038
LD Triplets, Pu au centre, en g	0,107 ± 0,008	0,0634 ± 0,0030	0,594 ± 0,057
Coefficient d'étalonnage, ^{252}Cf , ROI (en coups _{30min} .g _{240Puéq} ⁻¹)	2 368 ± 6		554 ± 3
Coefficient d'étalonnage, Pu, ROI (en coups _{30min} .g _{240Puéq} ⁻¹)	1 833 ± 25		283 ± 10
LD (ROI, ^{252}Cf au centre, en g)	0,075	0,057	0,271
LD (ROI, Pu au centre, en g)	0,110 ± 0,003	0,0687 ± 0,0020	0,784 ± 0,031

ANNEXE 10 : COMPTAGES CORRIGES DANS LES ROI POUR LES ETUDES DE PROPORTIONNALITE AVEC DIFFERENTS RATIOS ALPHA, EN SIMULATION

Tableau 97. Comptages corrigés de la ROI pour des simulations de ²⁴⁰Pu en présence d'AmBe, pour divers ratios alpha et avec un rejet standard de la diaphonie pendant 10 ns.

²⁴⁰ Pu, 10 g (1,02.10 ⁴ n.s ⁻¹)		Comptage des ROI, Histogrammes 2D (M2+), simulation d'une mesure de 60 s Rejet standard de diaphonie, Δt ≤ 10ns, Accidentelles « éloignées »				
Emission (α,n) AmBe en s ⁻¹ (et ratio α)	S (s ⁻¹)	Δ ₂₁ : 10-30 ns Δ ₃₂ : 10-30 ns	Δ ₂₁ : 10-30 ns Δ ₃₂ : 1000-1020 ns	Δ ₂₁ : 1000-1020 ns Δ ₃₂ : 10-30 ns	Δ ₂₁ : 400-420 ns Δ ₃₂ : 400-420 ns	Correction
0	5 817	2 203	2	9	0	2 192
1,02.10 ⁴ (α=1)	9 702	2 245	7	8	0	2 230
5,1.10 ⁴ (α=5)	25 231	2 395	49	60	0	2 286
1,02.10 ⁵ (α=10)	44 610	2 667	105	99	7	2 470
2,55.10 ⁵ (α=25)	102 653	3 748	437	483	31	2 859
5,1.10 ⁵ (α=50)	198 858	6 623	1 559	1 584	187	3 667
1,02.10 ⁶ (α=100)	389 413	16 337	6 657	6 644	1 428	4 464

Tableau 98. Comptages corrigés de la ROI pour des simulations de ²⁴⁰Pu en présence d'AmBe, pour divers ratios alpha et avec un rejet standard de la diaphonie pendant 30 ns.

²⁴⁰ Pu, 10 g (1,02.10 ⁴ n.s ⁻¹)		Comptage des ROI, Histogrammes 2D (M2+), simulation d'une mesure de 60 s Rejet standard de diaphonie, Δt ≤ 30ns, Accidentelles « éloignées »				
Emission (α,n) AmBe en s ⁻¹ (et ratio α)	S (s ⁻¹)	Δ ₂₁ : 10-30 ns Δ ₃₂ : 10-30 ns	Δ ₂₁ : 10-30 ns Δ ₃₂ : 1000-1020 ns	Δ ₂₁ : 1000-1020 ns Δ ₃₂ : 10-30 ns	Δ ₂₁ : 400-420 ns Δ ₃₂ : 400-420 ns	Correction
0	5,69.10 ³	1 193	2	9	0	1 182
1,02.10 ⁴ (α=1)	9,96.10 ³	1 209	6	7	0	1 196
5,1.10 ⁴ (α=5)	2,49.10 ⁴	1 296	39	35	0	1 222
1,02.10 ⁵ (α=10)	4,41.10 ⁴	1 355	79	67	7	1 216
2,55.10 ⁵ (α=25)	1,01.10 ⁵	1 811	265	329	34	1 251
5,1.10 ⁵ (α=50)	1,97.10 ⁵	3 118	979	1 009	177	1 307
1,02.10 ⁶ (α=100)	3,85.10 ⁵	8 064	4 370	4 360	1 364	698

Tableau 99. Comptages corrigés de la ROI pour des simulations de ²⁴⁰Pu en présence d'AmBe, pour divers ratios alpha et avec un rejet standard de la diaphonie pendant 60 ns.

²⁴⁰ Pu, 10 g (1,02.10 ⁴ n.s ⁻¹)		Comptage des ROI, Histogrammes 2D (M2+), simulation d'une mesure de 60 s Rejet standard de diaphonie, Δt ≤ 60ns, Accidentelles « éloignées »				
Emission (α,n) AmBe en s ⁻¹ (et ratio α)	S (s ⁻¹)	Δ ₂₁ : 10-30 ns Δ ₃₂ : 10-30 ns	Δ ₂₁ : 10-30 ns Δ ₃₂ : 1000-1020 ns	Δ ₂₁ : 1000-1020 ns Δ ₃₂ : 10-30 ns	Δ ₂₁ : 400-420 ns Δ ₃₂ : 400-420 ns	Correction
0	5,66.10 ³	1 068	3	9	0	1056
1,02.10 ⁴ (α=1)	9,50.10 ³	1 066	6	6	0	1054
5,1.10 ⁴ (α=5)	2,48.10 ⁴	1 120	34	32	0	1054
1,02.10 ⁵ (α=10)	4,40.10 ⁴	1 201	72	67	7	1069
2,55.10 ⁵ (α=25)	1,01.10 ⁵	1 576	270	319	31	1018
5,1.10 ⁵ (α=50)	1,96.10 ⁵	2 671	995	998	170	848
1,02.10 ⁶ (α=100)	3,84.10 ⁵	7 087	4 337	4 323	1 347	-226

Tableau 100. Comptages corrigés de la ROI pour des simulations de ²⁴⁰Pu en présence d'AmBe, pour divers ratios alpha et avec un rejet parfait de la diaphonie pendant 10 ns.

²⁴⁰ Pu, 10 g (1,02.10 ⁴ n.s ⁻¹)		Comptage des ROI, Histogrammes 2D (M2+), simulation d'une mesure de 60 s Rejet parfait de diaphonie, Δt ≤ 10ns, Accidentelles « éloignées »				
Emission (α,n) AmBe en s ⁻¹ (et ratio α)	S (s ⁻¹)	Δ ₂₁ : 10-30 ns Δ ₃₂ : 10-30 ns	Δ ₂₁ : 10-30 ns Δ ₃₂ : 1000-1020 ns	Δ ₂₁ : 1000-1020 ns Δ ₃₂ : 10-30 ns	Δ ₂₁ : 400-420 ns Δ ₃₂ : 400-420 ns	Correction
0	6 015	2 395	2	12	0	2 381
1,02.10 ⁴ (α=1)	9 853	2 453	9	15	0	2 429
5,1.10 ⁴ (α=5)	25 244	2 608	52	60	0	2 496
1,02.10 ⁵ (α=10)	44 458	2 902	111	98	3	2 696
2,55.10 ⁵ (α=25)	102 015	3 979	443	473	30	3 093
5,1.10 ⁵ (α=50)	197 439	6 834	1 531	1 579	182	3 906
1,02.10 ⁶ (α=100)	386 542	16 621	6 558	6 496	1 393	4 960

Tableau 101. Comptages corrigés de la ROI pour des simulations de ²⁴⁰Pu en présence d'AmBe, pour divers ratios alpha et avec un rejet parfait de la diaphonie pendant 30 ns.

²⁴⁰ Pu, 10 g (1,02.10 ⁴ n.s ⁻¹)		Comptage des ROI, Histogrammes 2D (M2+), simulation d'une mesure de 60 s Rejet parfait de diaphonie, Δt ≤ 30ns, Accidentelles « éloignées »				
Emission (α,n) AmBe en s ⁻¹ (et ratio α)	S (s ⁻¹)	Δ ₂₁ : 10-30 ns Δ ₃₂ : 10-30 ns	Δ ₂₁ : 10-30 ns Δ ₃₂ : 1000-1020 ns	Δ ₂₁ : 1000-1020 ns Δ ₃₂ : 10-30 ns	Δ ₂₁ : 400-420 ns Δ ₃₂ : 400-420 ns	Correction
0	6,00.10 ³	2 267	2	12	0	2 253
1,02.10 ⁴ (α=1)	9,82.10 ³	2 271	8	12	0	2 251
5,1.10 ⁴ (α=5)	2,51.10 ⁴	2 285	53	53	0	2 179
1,02.10 ⁵ (α=10)	4,42.10 ⁴	2 441	92	94	3	2 258
2,55.10 ⁵ (α=25)	1,01.10 ⁵	2 892	373	389	33	2 163
5,1.10 ⁵ (α=50)	1,96.10 ⁵	4 719	1 218	1 278	180	2 403
1,02.10 ⁶ (α=100)	3,84.10 ⁵	11 580	5 232	5 373	1 364	2 339

Tableau 102. Comptages corrigés de la ROI pour des simulations de ²⁴⁰Pu en présence d'AmBe, pour divers ratios alpha et avec un rejet parfait de la diaphonie pendant 60 ns

²⁴⁰ Pu, 10 g (1,02.10 ⁴ n.s ⁻¹)		Comptage des ROI, Histogrammes 2D (M2+), simulation d'une mesure de 60 s Rejet parfait de diaphonie, Δt ≤ 60ns, Accidentelles « éloignées »				
Emission (α,n) AmBe en s ⁻¹ (et ratio α)	S (s ⁻¹)	Δ ₂₁ : 10-30 ns Δ ₃₂ : 10-30 ns	Δ ₂₁ : 10-30 ns Δ ₃₂ : 1000-1020 ns	Δ ₂₁ : 1000-1020 ns Δ ₃₂ : 10-30 ns	Δ ₂₁ : 400-420 ns Δ ₃₂ : 400-420 ns	Correction
0	6,00.10 ³	2 258	2	12	0	2 244
1,02.10 ⁴ (α=1)	9,81.10 ³	2 257	9	12	0	2 236
5,1.10 ⁴ (α=5)	2,50.10 ⁴	2 299	54	59	0	2 186
1,02.10 ⁵ (α=10)	4,41.10 ⁴	2 432	96	95	4	2 245
2,55.10 ⁵ (α=25)	1,01.10 ⁵	2 943	403	408	29	2 161
5,1.10 ⁵ (α=50)	1,96.10 ⁵	4 654	1 239	1 285	170	2 300
1,02.10 ⁶ (α=100)	3,83.10 ⁵	11 252	5 325	5 360	1 342	1 909

Tableau 103. Comptages corrigés de la ROI avec la méthode des accidentelles proches pour des simulations de ²⁴⁰Pu en présence d'AmBe, pour divers ratios alpha et avec un rejet standard de la diaphonie pendant 30 ns.

²⁴⁰ Pu, 10 g (1,02.10 ⁴ n.s ⁻¹)		Comptage des ROI, Histogrammes 2D (M2+), simulation d'une mesure de 60 s Rejet standard de diaphonie, Δt ≤ 30ns, Accidentelles « proches »				
Emission (α,n) AmBe en s ⁻¹ (et ratio α)	S (s ⁻¹)	Δ ₂₁ : 10-30 ns Δ ₃₂ : 10-30 ns	Δ ₂₁ : 10-30 ns Δ ₃₂ : 140-160 ns	Δ ₂₁ : 140-160 ns Δ ₃₂ : 10-30 ns	Δ ₂₁ : 60-80 ns Δ ₃₂ : 60-80 ns	Correction
0	5,69.10 ³	1 193	88	12	4	1 097
1,02.10 ⁴ (α=1)	9,96.10 ³	1 209	86	9	7	1 121
5,1.10 ⁴ (α=5)	2,49.10 ⁴	1 296	116	30	5	1 155
1,02.10 ⁵ (α=10)	4,41.10 ⁴	1 355	154	59	9	1 151
2,55.10 ⁵ (α=25)	1,01.10 ⁵	1 811	320	258	52	1 285
5,1.10 ⁵ (α=50)	1,97.10 ⁵	3 118	891	943	215	1 499
1,02.10 ⁶ (α=100)	3,85.10 ⁵	8 064	3 653	3 422	1 275	2 264

Tableau 104. Comptages corrigés de la ROI avec la méthode des accidentelles proches pour des simulations de ²⁴⁰Pu en présence d'AmBe, pour divers ratios alpha et avec un rejet standard de la diaphonie pendant 60 ns.

²⁴⁰ Pu, 10 g (1,02.10 ⁴ n.s ⁻¹)		Comptage des ROI, Histogrammes 2D (M2+), simulation d'une mesure de 60 s Rejet standard de diaphonie, Δt ≤ 60ns, Accidentelles « proches »				
Emission (α,n) AmBe en s ⁻¹ (et ratio α)	S (s ⁻¹)	Δ ₂₁ : 10-30 ns Δ ₃₂ : 10-30 ns	Δ ₂₁ : 10-30 ns Δ ₃₂ : 140-160 ns	Δ ₂₁ : 140-160 ns Δ ₃₂ : 10-30 ns	Δ ₂₁ : 60-80 ns Δ ₃₂ : 60-80 ns	Correction
0	5,66.10 ³	1 068	86	13	3	972
1,02.10 ⁴ (α=1)	9,50.10 ³	1 066	84	8	9	983
5,1.10 ⁴ (α=5)	2,48.10 ⁴	1 120	114	29	4	981
1,02.10 ⁵ (α=10)	4,40.10 ⁴	1 201	145	55	8	1 009
2,55.10 ⁵ (α=25)	1,01.10 ⁵	1 576	319	256	46	1 047
5,1.10 ⁵ (α=50)	1,96.10 ⁵	2 671	902	932	208	1 045
1,02.10 ⁶ (α=100)	3,84.10 ⁵	7 087	3 665	3 442	1 249	1 229

Tableau 105. Comptages corrigés de la ROI par la méthode des accidentelles proches pour des simulations de ²⁴⁰Pu en présence d'AmBe, pour divers ratios alpha, avec un rejet parfait de la diaphonie pendant 30 ns.

²⁴⁰ Pu, 10 g (1,02.10 ⁴ n.s ⁻¹)		Comptage des ROI, Histogrammes 2D (M2+), simulation d'une mesure de 60 s Rejet parfait de diaphonie, Δt ≤ 30ns, Accidentelles « proches »				
Emission (α,n) AmBe en s ⁻¹ (et ratio α)	S (s ⁻¹)	Δ ₂₁ : 10-30 ns Δ ₃₂ : 10-30 ns	Δ ₂₁ : 10-30 ns Δ ₃₂ : 140-160 ns	Δ ₂₁ : 140-160 ns Δ ₃₂ : 10-30 ns	Δ ₂₁ : 60-80 ns Δ ₃₂ : 60-80 ns	Correction
0	5 998	2 267	115	12	5	2 145
1,02.10 ⁴ (α=1)	9 820	2 271	118	12	5	2 146
5,1.10 ⁴ (α=5)	25 101	2 285	139	36	10	2 120
1,02.10 ⁵ (α=10)	44 182	2 441	206	69	22	2 188
2,55.10 ⁵ (α=25)	101 341	2 892	432	331	66	2 195
5,1.10 ⁵ (α=50)	196 104	4 719	1 129	1 068	303	2 825
1,02.10 ⁶ (α=100)	383 915	11 580	4 471	4 177	1 670	4 602

Tableau 106. Comptages corrigés de la ROI par la méthode des accidentelles proches pour des simulations de ²⁴⁰Pu en présence d'AmBe, pour divers ratios alpha, avec un rejet parfait de la diaphonie pendant 60 ns.

²⁴⁰ Pu, 10 g (1,02.10 ⁴ n.s ⁻¹)		Comptage des ROI, Histogrammes 2D (M2+), simulation d'une mesure de 60 s Rejet parfait de diaphonie, Δt ≤ 60ns, Accidentelles « proches »				
Emission (α,n) AmBe en s ⁻¹ (et ratio α)	S (s ⁻¹)	Δ ₂₁ : 10-30 ns Δ ₃₂ : 10-30 ns	Δ ₂₁ : 10-30 ns Δ ₃₂ : 140-160 ns	Δ ₂₁ : 140-160 ns Δ ₃₂ : 10-30 ns	Δ ₂₁ : 60-80 ns Δ ₃₂ : 60-80 ns	Correction
0	6,00.10 ³	2 258	112	13	4	2 137
1,02.10 ⁴ (α=1)	9,81.10 ³	2 257	115	11	7	2 138
5,1.10 ⁴ (α=5)	2,50.10 ⁴	2 299	142	38	5	2 124
1,02.10 ⁵ (α=10)	4,41.10 ⁴	2 432	208	70	9	2 163
2,55.10 ⁵ (α=25)	1,01.10 ⁵	2 943	439	323	54	2 235
5,1.10 ⁵ (α=50)	1,96.10 ⁵	4 654	1 143	1 136	206	2 581
1,02.10 ⁶ (α=100)	3,83.10 ⁵	11 252	4 521	4 182	1 241	3 790

Titre : Optimisation de la mesure neutronique des coïncidences avec des scintillateurs plastique pour la caractérisation des déchets radioactifs

Résumé : La caractérisation du plutonium dans les fûts de déchets radioactifs par mesure neutronique passive des coïncidences avec des scintillateurs au plastique PVT (polyvinyle toluène), comme alternative potentielle aux compteurs à hélium 3, permettrait de réduire le coût des systèmes de mesure tout en conservant une efficacité de détection similaire, et d'avoir une réponse plus rapide car ne nécessitant pas de thermalisation des neutrons à détecter. Cependant, ces scintillateurs sont sensibles aux rayonnements gamma et à la diaphonie de diffusion neutronique ou gamma entre détecteurs voisins, qui crée des coïncidences parasites masquant celles des fissions spontanées du plutonium. Une méthode innovante de discrimination temporelle des coïncidences d'au moins 3 particules grâce à leur temps de vol a été validée expérimentalement et a fait l'objet d'un dépôt de brevet. Les temps séparant la détection des 1^{ère} et 2^{ème} particules sont représentés en fonction de ceux des 2^{ème} et 3^{ème}, ce qui permet de mieux séparer les coïncidences utiles de fissions spontanées de celles dues aux réactions (α, n) ou à des sources gamma. Des simulations avec le code MCNPX-PoliMi ont permis d'identifier les types de coïncidences ($\gamma\gamma\gamma$, γnn , γn , nnn) car les scintillateurs PVT ne permettent pas de discriminer neutrons et rayonnements gamma, et d'optimiser le rejet de la diaphonie par paralysie des détecteurs voisins d'un 1^{er} scintillateur activé. Les effets de matrice et de localisation du plutonium ont été évalués pour un colis maquette de 118 litres contenant une matrice métallique ou organique, avec des incertitudes relatives de 27 % et 41 % respectivement. La simulation d'un système plus symétrique que celui utilisé, avec un fût centré par rapports aux détecteurs, montre que ces incertitudes pourraient être abaissées à 17 % et 15 %. Le coefficient de sensibilité (nombre de coïncidences par gramme de plutonium) pour une répartition homogène dans la matrice est environ 2 fois plus faible avec la matrice organique, ce qui est gérable en pratique en utilisant des matrices étalon représentatives de chaque type de déchets radioactifs (organiques, métalliques, mixtes...). Les limites de détection estimées pour 30 min de mesure sont de l'ordre de 0,1 g ou 0,7 g de ^{240}Pu au centre de la matrice métallique ou organique. Ces valeurs offrent peu de marge car la plupart des colis de déchets réels ne contiennent que quelques grammes de plutonium. Il faudra donc optimiser les performances, avec par exemple davantage de compteurs et des temps de mesure plus longs. Par ailleurs, les paramètres influents de la méthode ont été étudiés par la mesure et la simulation, en vue de soustraire les coïncidences accidentelles et d'extraire le signal utile des fissions spontanées. Des biais sur le signal net ont été identifiés, avec une sous-estimation liée au temps mort d'intégration de la charge sur chaque voie de mesure sensible à fort taux de comptage (au-delà de 10^5 s^{-1}), et une surestimation due au rejet incomplet de la diaphonie à fort « ratio alpha » entre les émissions neutroniques de réactions (α, n) et fissions spontanées. Les essais avec un écran de plomb de 5 cm devant les scintillateurs, contre les émissions gamma du plutonium, ont montré la possibilité d'extraire le signal net avec moins de 50 % de surestimation jusqu'à un ratio alpha d'environ 10. Au-delà, la surestimation devient trop importante et une méthode de détection des ratios alpha élevés devra être étudiée, basée sur des rapports des comptages de coïncidences de différentes multiplicités. Néanmoins, la majorité des colis de déchets réels présentent des ratio alpha proches de l'unité, et globalement inférieurs à 10. Les taux de comptage attendus sont de plus inférieurs à quelques dizaines de milliers de coups par seconde, domaine où la méthode est applicable en l'état et présente un potentiel d'application industrielle intéressant.

Mots clés : Déchets radioactifs, mesure neutronique passive, scintillateurs au plastique PVT, coïncidences, comptage des multiplicités, temps de vol

Title : Optimization of neutron coincidence counting with plastic scintillators for radioactive waste drum characterization

Abstract: The characterization of plutonium in radioactive waste drums by passive neutron coincidence counting with PVT (polyvinyl toluene) plastic scintillators is a potential alternative to helium-3 counters, which allows a lower cost of measurement systems while keeping similar detection efficiency, together with a faster response as no neutron thermalization is needed before detection. However, these scintillators are sensitive to gamma radiation and to neutron or gamma-ray scattering crosstalk between neighboring detectors, which creates spurious coincidences parasitizing those of plutonium spontaneous fissions. An innovative method based on time discrimination of at least 3 coincident particles, thanks to their time of flight, has been experimentally validated and patented. The times separating the detection of the 1st and 2nd particles are represented as a function of those of the 2nd and 3rd ones, which makes it possible to better separate useful coincidences of spontaneous fissions from those due to (α ,n) reactions or to gamma-ray sources. Simulations with the MCNPX-PoliMi code were performed to help identification of $\gamma\gamma\gamma$, $\gamma\gamma n$, $\gamma n n$ and $n n n$ coincidences as PVT scintillators do not allow neutron-gamma discrimination. Calculations were also used to optimize crosstalk rejection by paralyzing neighbor detectors of a 1st activated scintillator. Matrix and localization effects were evaluated for plutonium with a 118-liter mock-up drum containing a metallic or organic matrix, with relative uncertainties of 27 % and 41 % respectively. The simulation of a more symmetrical system than our experimental demonstrator, i.e. with a waste drum centered with respect to detectors, shows that these uncertainties could be reduced to 17 % and 15 %. The sensitivity coefficient (number of coincidences per gram of plutonium) for a homogeneous distribution in the matrix is approximately 2 times lower with the organic matrix, which is manageable in practice by using different standard matrices for each type of radioactive waste (organic, metallic, mixed...). The detection limits estimated for 30 min measurement are about 0.1 g of ²⁴⁰Pu at the center of the metallic waste matrix, and 0.7 g for the organic waste. This could be improved by implementing more detectors or increasing measurement time, for instance, as real waste drums generally contain only a few grams of plutonium. In addition, the sensitive parameters were studied by both experiment and simulation, in order to subtract the contribution of accidental coincidences from the useful signal of spontaneous fissions. Biases were thus identified, i.e. a underestimation due to charge integration dead time on each measurement channel, which becomes stringent at high counting rate (from 10^5 s^{-1}), and an overestimation due to incomplete crosstalk rejection at high "alpha ratio" between neutron emissions from (α ,n) reactions and spontaneous fissions. Qualification tests with a 5 cm lead screen in front of the scintillators, to prevent from plutonium gamma radiations, have shown the possibility of extracting the net signal with less than 50 % overestimation up to an alpha ratio of about 10. Beyond this limit, the overestimation becomes impractically high and a method to detect high alpha ratios should be studied, e.g. based on count ratios between coincidences of different multiplicity orders. Nevertheless, the majority of real waste packages show an alpha ratio close to unity, and generally less than 10. In addition, count rates are lower than a few tens of thousands counts per second, and for these drums, the method developed in this PhD show a real potential for industrial application.

Keywords: Radioactive waste, passive neutron measurement, PVT plastic scintillators, coincidences, multiplicity counting, time of flight

Unité de recherche

CEA | Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives

DES | Direction des énergies

IRESNE | Institut de Recherche sur les Systèmes Nucléaires pour la production d'Energie bas carbone

DTN | Département de technologie nucléaire

SMTA | Service Mesures et modélisations des Transferts et des Accidents graves

LMN | Laboratoire de Mesures Nucléaires

CEA CADARACHE

13 115 Saint Paul Lez Durance, France