



HAL
open science

Étude, évaluation, et validation des potentialités des accélérateurs d'électrons comme outils polyvalents de caractérisation des colis de déchets radioactifs

Adrien Sari

► To cite this version:

Adrien Sari. Étude, évaluation, et validation des potentialités des accélérateurs d'électrons comme outils polyvalents de caractérisation des colis de déchets radioactifs. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université Paris-Sud, 2013. Français. ⟨NNT : 2013PA112154⟩. ⟨tel-02269350⟩

HAL Id: tel-02269350

<https://hal.science/tel-02269350v1>

Submitted on 22 Aug 2019

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

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



HAL Authorization

THÈSE

pour l'obtention du Grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PARIS-SUD

MENTION PHYSIQUE

École Doctorale **534 MIPEGE**

Présentée par :

Adrien SARI

Étude, évaluation, et validation des potentialités des accélérateurs d'électrons comme outils polyvalents de caractérisation des colis de déchets radioactifs

Directeur de thèse : Pr. Abdallah LYOUSSI

Encadrant : Dr. Frédéric CARREL

Soutenue le 27 septembre 2013 devant la Commission d'Examen composée de :

Gilles BAN, Enseignant-chercheur ENSICAEN _____ Rapporteur
Bertrand PEROT, Ingénieur-chercheur (HDR) CEA _____ Rapporteur
Frédéric CARREL, Ingénieur-chercheur CEA _____ Examineur
Pierre DESESQUELLES, Enseignant-chercheur Université-Paris-Sud _____ Examineur
Cheikh DIOP, Directeur de recherches CEA _____ Examineur
Abdallah LYOUSSI, Ingénieur-chercheur (HDR) CEA, Professeur INSTN _____ Examineur
Thibaut GAIN, Ingénieur AREVA _____ Invité
Christian PASSARD, Ingénieur-chercheur CEA _____ Invité

REMERCIEMENTS

Mes trois années de thèse au CEA LIST ont été l'occasion pour moi d'effectuer de nombreuses rencontres, et... ô combien enrichissantes, tant du point de vue scientifique que du point de vue humain. Quelques remerciements écrits ne suffiront certainement pas pour exprimer toute ma gratitude envers ces nombreuses personnes. Cependant, en voici un bref résumé.

Je souhaite en premier lieu exprimer ma reconnaissance envers mon Directeur de thèse, le Pr. Abdallah LYOUSSI. Abdallah, merci pour avoir accepté d'assurer la fonction de Directeur de ma thèse. Merci pour le temps que tu m'as accordé afin d'échanger et discuter de mes résultats. Tes remarques et conseils avisés m'ont été d'une grande aide tout au long de ces trois années.

Je remercie vivement mes rapporteurs de thèse, Dr. Bertrand PEROT et Pr. Gilles BAN. Je vous suis très reconnaissant pour avoir accepté de réaliser le travail de rapporteurs sur mes travaux de thèse. Bertrand, je te remercie une nouvelle fois pour les cinq heures au téléphone (sur deux jours...) à discuter de mon mémoire !

Pr. Pierre DESESQUELLES, je vous remercie pour avoir accepté de faire partie de mon jury de thèse, et avoir présidé ce dernier. Dr. Cheikh DIOP, je vous remercie pour avoir accepté d'examiner mes travaux de thèse avec attention.

Je souhaite remercier M. Thibaut GAIN et Dr. Christian PASSARD pour avoir accepté l'invitation à ma soutenance de thèse. Thibaut, ton analyse et ton retour sur mes travaux, en tant que représentant industriel AREVA, a été très importante pour moi. Merci beaucoup ! Christian, merci pour m'avoir accordé du temps pour échanger avec toi régulièrement sur la conception par simulation MCNPX de ma cellule INA, sur mes résultats expérimentaux, et sur mon article pour la revue NIMB. Ton regard d'expert en INA m'a été d'une aide très précieuse ! Merci également pour les cinq heures passées au téléphone à discuter de mon mémoire.

Je remercie très chaleureusement le Dr. Frédérick CARREL, mon encadrant. Merci de m'avoir accordé ta confiance. Merci pour ta disponibilité, pour les très nombreuses discussions scientifiques (et autres), pour les multiples relectures, et pour ton soutien moral. Je te suis très reconnaissant pour ton investissement dans ta mission d'encadrement de la thèse !

Un grand merci au Dr. Stéphane NORMAND, mon chef de labo. Merci pour ta confiance, ta disponibilité, ton implication et ton soutien ! Merci également pour m'avoir autorisé à voyager de par le monde, et ce à plusieurs reprises, pour présenter mon travail dans les conférences de référence du domaine.

Je remercie également notre chef de département (qui fut mon premier chef de labo), le Dr. Mehdi GMAR. Merci pour m'avoir permis de me lancer dans cette « expérience d'une vie » en m'ouvrant les portes du LM2S en 2010.

Mes remerciements vont également à Frédéric LAINE (alias Fred l'Ancien) avec qui j'ai passé de nombreuses journées de manip' dans le sous-sol de l'installation SAPHIR. Fred, ta disponibilité et ton don pour trouver des solutions pratiques à mes idées de manip' (même les plus folles) ont grandement contribué à la réussite de mes campagnes de mesure. Merci beaucoup !

Je remercie Odile PETIT et Cédric JOUANNE, membres de l'équipe de développement du code de calcul Monte Carlo TRIPOLI-4 (CEA DEN). C'est grâce à votre aide et au temps que vous m'avez accordé dans ma quête d'inter-comparaison des codes MCNPX et TRIPOLI-4 que notre échange a été si fécond.

Je remercie également les personnes du LNHB et du LM2S qui ont rendu possible, et qui m'ont soutenu ou aidé, dans mon étude de caractérisation du flux de photoneutrons émis par l'accélérateur médical Saturne 43F du LNHB. Merci à Loic LE NOIR DE CARLAN, Bénédicte POUMAREDE, Jean-Marc BORDY, Aimé OSTROWSKY, Line SOMMIER, Igor BESSIERES, et Mathieu AGELOU.

Merci également « aux pros du *cluster* », Juan-Carlos GARCIA-HERNANDEZ et Olivier LAHAYE. Merci beaucoup Juan pour avoir répondu favorablement à mes requêtes concernant les sections efficaces de MCNPX et pour les installations de TRIPOLI-4 sur le cluster.

Merci beaucoup à Marion LEDIEU, ma première stagiaire. Bravo à toi pour ces quatre mois de très bon boulot !

Je remercie l'ensemble du LCAE (LCAE au sens large du terme). Merci à Jennifer, Vincent, Pauline (et son ami John S. Hendricks du LANL), Maugan, Caro, Matthieu, Karim, Chrystèle, Hermine, Guillaume B., Yoann, Thomas... Merci également à mes anciens collègues du LM2S !

Pawel et « Asha » (Joanna) du NCBJ, merci à vous pour la visite de Varsovie *by night* et m'avoir fait découvrir le quotidien (pas tous les jours faciles) d'un chercheur au centre d'études nucléaires polonais.

Je souhaite remercier mes ex-collègues doctorants MIPEGE (aujourd'hui docteurs pour certains) : Rachel, Igor, Nico, Mingchao, Isabelle, Sybelle, Camille, et Stéphane D. Quelques fous rires mémorables, sur le chemin des séminaires mensuels de l'ED, me marqueront pendant encore très longtemps.

Un grand merci à Roxane, Dom, et Stéfun, supporters de longue date !

Enfin, je remercie ma sœur Julia, et mes parents, Elizabeth et Hikmet, pour le soutien infaillible qu'ils m'ont apporté durant ces trois années de thèse.

SOMMAIRE

INTRODUCTION GENERALE.....	8
CHAPITRE 1 : INTRODUCTION, CONTEXTE, ENJEUX, ET PHYSIQUE ASSOCIEE.....	11
1. Introduction, contexte et enjeux.....	11
1.1 Les colis de déchets radioactifs	11
1.2 Les méthodes de caractérisation.....	13
1.2.1 Méthodes non-destructives passives [Lyoussi05a]	13
1.2.1.1 Spectrométrie gamma passive	14
1.2.1.2 Comptage neutronique passif.....	14
1.2.2 Méthodes non-destructives actives [Lyoussi05b]	15
1.2.2.1 Interrogation neutronique active	16
1.2.2.2 Interrogation photonique active	17
1.2.2.3 La double interrogation.....	18
1.2.2.4 Imagerie photonique haute énergie.....	19
1.3 Conclusions	20
2. Éléments de physique	21
2.1 La fission nucléaire	21
2.1.1 Historique de la fission.....	21
2.1.2 Mécanisme de la fission	21
2.1.3 Données nucléaires sur la fission	22
2.2 Les photoneutrons	26
2.2.1 Réactions photonucléaires.....	26
2.2.2 Caractéristiques des photoneutrons	28
2.2.2.1 Distribution angulaire	28
2.2.2.2 Spectre en énergie.....	28
CHAPITRE 2 : CONNAISSANCE DU FLUX DE PHOTONEUTRONS	30
1. Caractérisation du flux de photoneutrons par simulation	30
1.1 Spectre en énergie	31
1.2 Distribution angulaire.....	33
1.3 Intensités moyennes d'émission.....	35

2. Optimisation du flux de photoneutrons par simulation	44
2.1 Production de photoneutrons.....	44
2.2 Production de photons parasites	46
3. Évaluation expérimentale par activation neutronique	47
3.1 Motivations et méthode	47
3.2 Dimensionnement d'un détecteur à activation	48
3.3 Caractérisation du flux de photoneutrons émis par l'accélérateur de l'installation SAPHIR.....	52
3.3.1 Distribution angulaire.....	52
3.3.2 Spectre en énergie et intensité moyenne d'émission.....	60
3.4 Caractérisation du flux de photoneutrons émis par un accélérateur médical	66
3.4.1 Profil.....	67
3.4.2 Évaluation du modèle MCNPX.....	68
3.4.3 Spectre en énergie et intensités moyennes d'émission.....	74
4. Conclusions.....	77
CHAPITRE 3 : INTERROGATION NEUTRONIQUE ACTIVE : ETUDE DE FAISABILITE	79
1. Expressions théoriques	79
1.1 Signal des neutrons prompts	79
1.2 Signal des neutrons retardés	80
1.3 Signal des gamma retardés	80
2. Mesure d'interrogation neutronique active.....	82
2.1 Dispositif expérimental et protocole	82
2.2 Signal versus durée d'irradiation.....	87
2.3 Signal des neutrons prompts et retardés	88
2.4 Rapport entre signaux neutroniques prompt et retardé	89
2.5 Détection des gamma retardés.....	92
3. Association de résultats de mesures d'interrogation neutronique et photonique actives	94
3.1 Dispositif expérimental et protocole	94
3.2 Neutrons prompts ou retardés de fission thermique et de photofission	95
3.3 Gamma retardés de fission thermique et de photofission	96
4. Conclusions.....	97

CHAPITRE 4 : INTERROGATION NEUTRONIQUE ACTIVE : APPLICATION SUR COLIS..... 98

1. Conception d'une cellule neutronique optimisée et basée sur un accélérateur d'électrons.	98
1.1 Enceinte thermalisante	99
1.1.1 Choix du matériau	99
1.1.2 Volume de la cavité interne	100
1.1.3 Épaisseur des parois	101
1.2 Source de neutrons	105
1.2.1 Accélérateur d'électrons versus générateur de neutrons	105
1.2.2 Conception d'une source de photoneutrons	106
1.2.2.1 Matériau de la cible	106
1.2.2.2 Épaisseur de la cible	106
1.2.2.3 Énergie des électrons	107
1.2.2.4 Position de la cible	107
1.2.2.5 Enrobage de la cible	109
1.3 Blocs de détection	111
1.3.1 Disposition des détecteurs à ^3He	112
1.3.2 Épaisseur de polyéthylène sur la face avant	113
1.3.3 Épaisseur de polyéthylène sur la face arrière	115
1.3.4 Performances d'un bloc optimisé	117
1.4 Configuration dédiée à la mesure d'interrogation photonique active	117
2. Évaluation expérimentale de la méthode sur colis maquette	121
2.1 Dispositif de mesure	121
2.1.1 La cellule neutronique	121
2.1.2 Performance de la nouvelle cellule	122
2.1.3 Les matrices	122
2.2 Résultats expérimentaux	124
2.2.1 Mesures sur échantillons nus	124
2.2.1.1 Différenciation de l' ^{235}U et du ^{239}Pu	124
2.2.1.2 Calculs de sensibilité	125
2.2.2 Effets de matrice	125

2.2.3 Optimisation du flux interrogateur	128
3. Conclusions.....	131
CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES.....	133
ANNEXE 1 : EXPRESSION THEORIQUE DU SIGNAL DES GAMMA DE DESACTIVATION	137
ANNEXE 2 : EXPRESSION THEORIQUE DU SIGNAL DES NEUTRONS PROMPTS.....	140
ANNEXE 3 : EXPRESSION THEORIQUE DU SIGNAL DES NEUTRONS RETARDES	142
ANNEXE 4 : EXPRESSION THEORIQUE DU SIGNAL DES GAMMA RETARDES.....	144
ANNEXE 5 : CALCUL DE MASSES A LA LIMITE DE DETECTION	146
REFERENCES	147
LISTE DES FIGURES	153
LISTE DES TABLEAUX.....	158
LISTE DES PUBLICATIONS ET COMMUNICATIONS ORALES.....	160

INTRODUCTION GENERALE

Les déchets radioactifs représentent un enjeu majeur pour l'industrie nucléaire. La gestion de ces déchets est nécessaire et importante, tant d'un point de vue éthique, scientifique et économique, que du point de vue de la protection des personnes et de l'environnement. Une gestion pérenne des déchets radioactifs requiert une connaissance fine de leur contenu radiologique (activité alpha, activité bêta, masse fissile, débit de dose...) La mesure des actinides (uranium, plutonium, curium, américium...) majoritairement émetteurs alpha à vie longue, est une étape importante au sein de ce processus de caractérisation. On peut par exemple souligner que les normes d'entreposage en surface sont reliées aux quantités de ces différents actinides présents dans les colis. Du fait de la grande diversité des colis de déchets radioactifs, leur caractérisation nécessite l'emploi d'une ou de plusieurs techniques de mesure complémentaires.

Les techniques de caractérisation sont généralement regroupées en deux catégories, à savoir : les méthodes destructives et les méthodes non-destructives. Les méthodes destructives, basées sur le prélèvement et l'analyse d'échantillons, constituent une solution d'intérêt mais sont souvent limitées par le manque de représentativité des résultats (colis hétérogènes). La caractérisation radiologique d'un colis est donc plus fréquemment réalisée à l'aide de méthodes dites non-destructives. Ces méthodes permettent une analyse complète du colis tout en préservant son intégrité. Deux types de méthodes non-destructives existent : les méthodes passives et les méthodes actives. Les méthodes passives consistent à détecter les particules émises spontanément par le contaminant présent dans le colis. Cependant, ces méthodes peuvent être limitées par des effets d'auto-absorption au sein des colis, par l'émission passive neutronique ou photonique du colis, ou encore, par l'interférence du signal utile avec le bruit de fond. Les méthodes actives, reposant sur la réaction de fission nucléaire, sont ainsi souvent requises pour détecter les actinides. Ces méthodes visent à induire des réactions de fission sur les actinides, à l'aide d'un faisceau interrogateur de particules, puis à détecter les particules promptes et retardées émises suite aux réactions de fission. La technique utilisant un faisceau interrogateur de neutrons visant à induire des réactions de fission porte le nom d'interrogation neutronique active (INA) [Passard93, Pérot96, Raoux00]. Cette technique est actuellement exploitée dans l'industrie nucléaire, notamment pour caractériser des colis fortement irradiants. La technique utilisant un faisceau interrogateur de photons de haute énergie visant à induire des réactions de photofission porte le nom d'interrogation photonique active (IPA). Cette technique est l'objet de travaux de recherche et développement dans plusieurs centres de recherche depuis de nombreuses années [Lyoussi94, Gmar00, Carrel07]. Les neutrons interrogateurs sont traditionnellement émis par un générateur deutérium-tritium tandis que les photons de haute énergie sont produits par rayonnement de freinage (*Bremsstrahlung*) dans la cible de conversion d'un accélérateur d'électrons. Durant une mesure d'interrogation photonique active, des neutrons parasites sont créés dans la cible de conversion de l'accélérateur par des réactions photonucléaires. Ces neutrons sont couramment dénommés « photoneutrons ».

L'objectif de ce projet de recherche est d'utiliser le flux de photoneutrons délivré par un accélérateur linéaire d'électrons (LINAC), en lieu et place d'un générateur de neutrons traditionnel, afin de réaliser des mesures d'interrogation neutronique active. L'un des principaux avantages de cette approche est que le flux de photoneutrons délivré par un LINAC peut être jusqu'à environ cent fois supérieur par rapport au flux neutronique émis par un générateur deutérium-tritium. L'utilisation d'un LINAC comme source de particules interrogatrices peut donc potentiellement abaisser les masses limites de détection en interrogation neutronique active. Ce projet est également motivé par la possibilité de réaliser, à terme, un dispositif destiné à la caractérisation des colis de déchets radioactifs qui soit basé autour d'un accélérateur d'électrons. Un tel dispositif permettrait de combiner différentes techniques complémentaires lors de l'étude de caractérisation d'un colis, à savoir : l'interrogation neutronique active, l'interrogation photonique active, et l'imagerie haute énergie. Cette dernière technique permettrait de déterminer le niveau de remplissage d'un colis et de mettre en évidence des effets de matrice sur la détection des rayonnements neutroniques et photoniques (cartographie de la densité des déchets présents au sein du colis). L'interrogation neutronique active pourrait être centrée sur la détection des noyaux fissiles (^{235}U , ^{239}Pu ...) [Jallu99] tandis que l'interrogation photonique active pourrait être axée sur la détection des noyaux fertiles (^{238}U , ^{240}Pu ...) [Lyoussi99].

Des études précédentes ont permis d'identifier certaines contraintes lors de la mise en œuvre du couplage simultané de ces deux mesures [Franks82, Chakhlov99, Jallu00]. Nous orienterons donc nos travaux vers une réalisation séparée des mesures d'interrogation neutronique et photonique actives. Le flux de photons de haute énergie produit par un accélérateur d'électrons étant particulièrement directif [Nieschmidt77] alors que le flux de photoneutrons est émis de manière quasi-isotrope, la position de la cible de conversion de l'accélérateur pourrait ainsi être adaptée pour chacune des deux mesures. Les configurations mises en œuvre pour les mesures d'interrogation neutronique et photonique actives présentent également d'autres différences. Par exemple, les neutrons de 14 MeV issus d'un générateur, suite à la réaction de fusion entre un noyau de deutérium et un noyau de tritium, doivent être ralentis au sein d'une cellule de mesure afin d'augmenter leur probabilité d'interaction avec les actinides fissiles contenus dans un colis. La mesure par interrogation neutronique active requiert ainsi une cellule de mesure constituée d'un matériau permettant de thermaliser les neutrons rapides émis par la source associée à un dispositif de détection neutronique approprié.

L'énergie optimale des électrons délivrés par un LINAC pour la réalisation de mesures par interrogations neutronique et photonique actives est d'environ 15 MeV. En effet, cette énergie de photons correspond au maximum des sections efficaces de réaction de photofission pour les actinides. Cette énergie de photons correspond également au maximum des sections efficaces de réactions photonucléaires conduisant à la production de photoneutrons pour le tungstène et le tantale, matériaux souvent utilisés pour la fabrication des cibles de conversion d'accélérateur d'électrons. Au cours de notre étude, nous nous intéresserons donc à un accélérateur délivrant des électrons dont l'énergie est comprise entre 10 MeV et 20 MeV.

La thèse est constituée de trois axes principaux, qui constitueront les chapitres deux, trois et quatre de ce mémoire. Dans un premier temps, nous chercherons à acquérir une connaissance fine du flux interrogateur de photoneutrons délivré par un accélérateur d'électrons, et à optimiser ce flux pour la réalisation de mesures d'interrogation neutronique active. Dans un second temps, nous chercherons à démontrer la faisabilité de la mesure d'interrogation neutronique active « pure », c'est-à-dire sans contribution parasite de la photofission, à l'aide d'un accélérateur d'électrons et d'une maquette de cellule neutronique. Enfin, nous réaliserons la conception par simulation d'une cellule de mesure d'interrogation neutronique active, destinée à irradier des colis maquettes présentant un volume de 220 L. Nous pourrons ainsi évaluer les performances de notre méthode en présence de différents types de matrices au sein des colis. Le premier chapitre de ce mémoire est quant à lui consacré à la mise en perspective de nos travaux par rapport à l'état de l'art, et à une présentation des éléments de physique spécifiques à nos travaux de recherche et nécessaires à la compréhension des résultats présentés dans la suite du manuscrit.

CHAPITRE 1 : INTRODUCTION, CONTEXTE, ENJEUX, ET PHYSIQUE ASSOCIEE

1. Introduction, contexte et enjeux

1.1 Les colis de déchets radioactifs

L'Agence Internationale pour l'Energie Atomique (AIEA) donne la définition de déchet radioactif suivante : « toute matière pour laquelle aucune utilisation n'est prévue et qui contient des radionucléides en concentration supérieure aux valeurs que les autorités compétentes considèrent comme admissibles dans les matériaux propres à une utilisation sans contrôle ou au rejet ». Les déchets radioactifs proviennent essentiellement de l'industrie nucléaire civile destinée à la production d'énergie électrique. Cependant, ils peuvent également provenir de centres de recherche, ou encore, être générés par l'industrie agro-alimentaire, la médecine nucléaire, et les applications liées à la défense. Un colis de déchets radioactifs est constitué d'une matrice, d'une enveloppe, et d'un contaminant. La nature d'un colis, son origine, et son niveau de radioactivité, peuvent être très divers. La masse d'un colis peut aller de quelques dizaines de kilogrammes à plusieurs tonnes, et son activité peut s'étendre de quelques becquerels à plusieurs térabecquerels. Le type de contenu du colis et les radionucléides présents dans le colis peuvent varier fortement. Il peut notamment s'agir d'actinides, de produits de fission, et de produits d'activation. Bien que certains types de déchets soient sous forme liquide ou gazeuse, nous nous intéresserons exclusivement aux déchets solides au sein de ce mémoire de thèse. La figure 1.1 illustre, de manière non exhaustive, la diversité des types de colis de déchets radioactifs. Cette diversité explique notamment pourquoi une seule méthode de mesure ne peut suffire pour caractériser tous les types de colis.



Figure 1.1 : Différents types de colis de déchets radioactifs. De gauche à droite : bloc TE, coque CBFC-2, fût de 870 L, fût de 220 L, colis CSDC.

Cinq catégories existent pour classer les déchets radioactifs en fonction de leur contenu et de leurs activités α , β et γ . Elles portent les noms suivants : haute activité à vie longue (HA-VL), moyenne activité à vie longue (MA-VL), faible activité à vie longue (FA-

VL), faible et moyenne activité à vie courte (FA/MA-VC), et très faible activité (TFA). Le tableau 1.1 rassemble les informations principales sur ces cinq catégories.

Type de déchets	Description	Origine	Volume relatif (%)	Radioactivité relative (%)
HA – VL	Produits de fission / Actinides mineurs vitrifiés	Retraitement, Recherche	0,2	96,05
MA – VL	Gaines de combustible Boues de traitement d'effluents bitumés Déchets solides cimentés	Retraitement, Recherche	4,6	3,87
FA – VL	Déchets graphite (centrales UNGG) Déchets radifères	Démantèlement, déchets de procédé ou d'assainissement	4,5	0,01
FA / MA – VC	Déchets solides Boues cimentées Résines	Exploitation, maintenance, démantèlement d'installations de recherche ou industrielles	79,6	0,07
TFA	Gravats, ferrailles Déchets industriels spéciaux	Démantèlements	11,1	- 0

Tableau 1.1 : Classification des déchets radioactifs en fonction des critères d'activité massique et de durée de vie [Carrel07].

Différents modes de gestion sont adoptés en fonction de la catégorie à laquelle le colis de déchets appartient. Bien qu'un entreposage en surface puisse convenir pour certains types de déchets, à terme, les colis les plus radioactifs et à vie longue seront destinés au stockage en profondeur (futur centre de stockage CIGEO géré par l'ANDRA). Par ailleurs, les déclarations du fabricant sur les contenus radiologiques de certains colis peuvent être incomplètes, erronées, voire indisponibles. Cette remarque est essentiellement valable pour

les colis fabriqués il y a plusieurs décennies, avant le renforcement de la réglementation française sur les déchets nucléaires et la mise en place de procédures de contrôle et de traçabilité lors de leur production. Nous pouvons citer le cadre réglementaire instauré par la loi Bataille datée de 1991 [Loi n°91-1381] qui sera complétée en 2006 [Loi n°2006-739].

Les mêmes motivations qui ont conduit à ces lois amènent également à développer des méthodes permettant d'affiner la caractérisation des colis de déchets radioactifs. Certains colis peuvent représenter une menace pour l'Homme et l'environnement. Leur gestion et notamment leur caractérisation constituent un devoir moral vis-à-vis des générations futures. Une gestion optimale de l'aval du cycle du combustible nucléaire passe en partie par le déploiement de techniques de mesure plus efficaces et plus précises, et si possible moins chères. La reclassification/décatégorisation de certains colis (par exemple de la catégorie FA/MA-VC à TFA) permettrait notamment d'optimiser la gestion et les coûts associés.

1.2 Les méthodes de caractérisation

Les méthodes de caractérisation des colis de déchets radioactifs sont généralement classées en deux catégories. La première catégorie nécessite le prélèvement d'un échantillon de colis. Ces méthodes, qualifiées de destructives, sont performantes mais limitées par le fait que les conclusions obtenues suite à l'analyse de l'échantillon ne peuvent généralement pas être étendues à l'ensemble du colis en raison de son hétérogénéité. Au-delà de nuire à l'intégrité des colis, les méthodes destructives présentent également l'inconvénient de générer des déchets radioactifs supplémentaires suite à la contamination des outils nécessaires au prélèvement de l'échantillon. La deuxième catégorie est celle des méthodes non-destructives. Deux types de méthodes non destructives peuvent être mises en œuvre dans le cadre de la caractérisation d'un colis : les méthodes passives et les méthodes actives. L'ensemble de ces méthodes ont été largement discutées au sein de précédents travaux de thèse de doctorat [Lyoussi94, Jallu99, Raoux00, Gmar00, Carrel07]. Nous rappelons ici les méthodes les plus couramment utilisées, leurs principes de fonctionnement, et exposons leurs principaux avantages et limitations. Cependant, il est important de rappeler au préalable que le couplage de ces différentes méthodes de mesure, ainsi que l'association de leurs résultats et leur interprétation combinée, permettent d'extraire potentiellement plus d'informations sur un colis que celles apportées individuellement par chacune de ces techniques, et surtout de réduire les incertitudes de mesure. L'optimisation du couplage de ces différentes méthodes constitue donc un enjeu important dans le processus de caractérisation des colis.

1.2.1 Méthodes non-destructives passives [Lyoussi05a]

Les méthodes passives consistent à détecter les particules s'échappant spontanément du colis, à savoir des photons gamma et des neutrons. Le principal avantage des méthodes passives par rapport aux méthodes actives réside dans leur relative simplicité de mise en œuvre.

1.2.1.1 Spectrométrie gamma passive

La spectrométrie gamma passive repose sur l'utilisation d'un détecteur de photons gamma et d'une chaîne d'acquisition [Gilmore95, Lyoussi05a]. La figure 1.2 montre la configuration expérimentale type utilisée lors de la réalisation d'une telle mesure avec un détecteur germanium sur un colis de type CBFC-2 et un exemple de spectre gamma passif. Ce type de détecteur est souvent employé en raison de son excellente résolution en énergie (résolution de 2 keV à 1332 keV). La spectrométrie gamma passive permet par exemple d'évaluer la masse d' ^{235}U contenue dans un colis à partir de l'aire nette du pic à 185,7 keV, et celle d' ^{238}U à partir de l'aire nette du pic à 1001 keV émis par un de ses descendants, le protactinium-234 métastable ($^{234\text{m}}\text{Pa}$). L'analyse des spectres gamma passifs à l'aide de codes de calcul dédiés (MGA, IGA, ou FRAM) permet de déterminer la composition isotopique de l'uranium et du plutonium contenus dans le colis [Simon11]. En revanche, la spectrométrie gamma passive est souvent limitée du fait de l'absorption des gamma au sein même du colis. La présence de ^{137}Cs ou de ^{60}Co dans le colis peut également engendrer un fond Compton important rendant difficile la détection d'autres radio-isotopes, notamment les actinides (la majorité des rayonnements gamma émis par ces derniers est inférieure à 600 keV). C'est notamment le cas des colis de déchets radioactifs contenant des coques et embouts compactés [Raoux00, Toubon01].

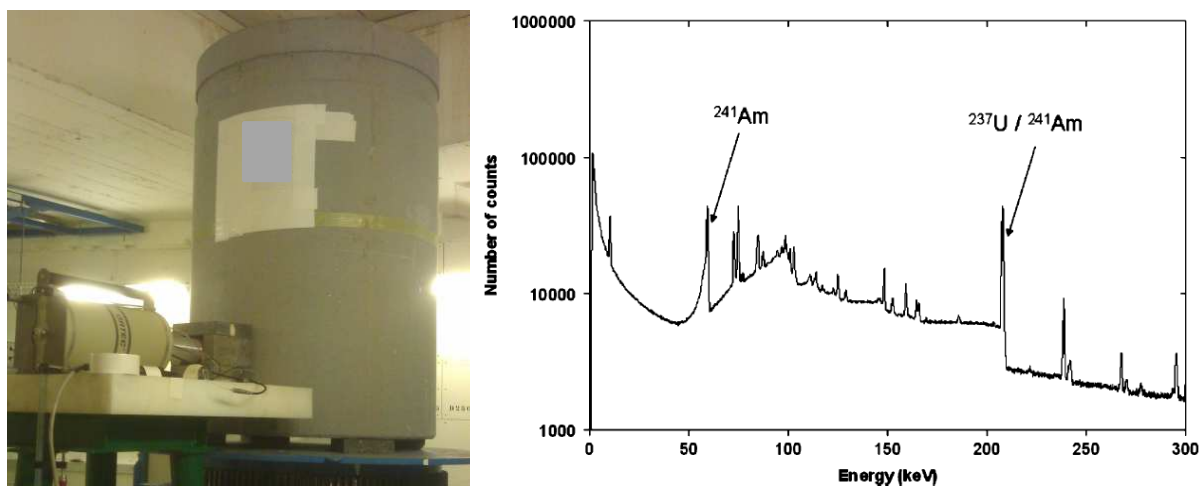


Figure 1.2 : Mesure de spectrométrie gamma passive sur un colis de type CBFC-2 avec un détecteur germanium (à gauche), et exemple de spectre [Carrel10b] (à droite).

1.2.1.2 Comptage neutronique passif

Les neutrons émis par un colis peuvent provenir de la fission spontanée de certains actinides (^{238}U , ^{240}Pu ...) et de réactions (α , n) suite à l'interaction de rayonnements alpha issus de la désintégration de certains noyaux lourds (^{241}Am , ^{238}Pu ...) avec des éléments légers de la matrice (aluminium, bore...) Divers types de comptage neutronique passif peuvent être effectués [Lyoussi05a, Lyoussi10]. Le comptage neutronique total s'attache à détecter l'ensemble des neutrons tandis que le comptage des coïncidences consiste à ne retenir que les neutrons prompts de fission spontanée. Cette dernière technique de comptage est la plus

fréquemment employée car elle permet de s'affranchir de la difficulté d'interprétation du signal due aux neutrons de réactions (α, n). En effet, selon la forme chimique du contaminant (oxyde, fluor), l'émission neutronique peut être très différente. Nous pouvons aussi noter qu'une autre technique de comptage, consistant à détecter des coïncidences de plus de deux neutrons, fait actuellement l'objet de développements en laboratoire : le comptage des multiplicités. Une fois la composition isotopique connue grâce à la mesure de spectrométrie gamma passive, le comptage neutronique total ou la mesure des coïncidences permettent d'estimer la masse de plutonium contenue dans le colis. La principale difficulté rencontrée lors d'une mesure de comptage neutronique passif réside dans la complexité de l'interprétation des comptages obtenus. Les mesures par coïncidences neutroniques visant à quantifier le plutonium sont quant à elles limitées par la présence de noyaux également émetteurs par fission spontanée (exemple du ^{244}Cm). La figure 1.3 présente le dispositif utilisé sur l'installation SAPHIR pour une mesure neutronique passive sur un colis de type CBFC-2 et un exemple de résultat obtenu.

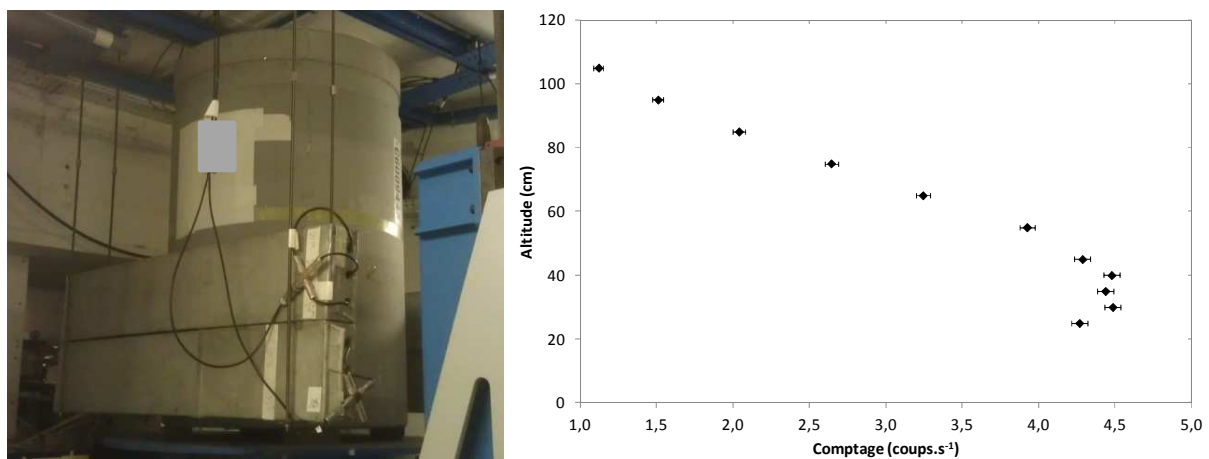


Figure 1.3 : Mesure de comptage neutronique passif sur un colis de type CBFC-2 avec des blocs de détection contenant des détecteurs à ^3He (à gauche), et exemple de comptages obtenus [Carrel10b] (à droite).

1.2.2 Méthodes non-destructives actives [Lyoussi05b]

Dans certaines situations, les méthodes non-destructives passives sont confrontées à des limitations les rendant inapplicables. Dans ce cas, les méthodes actives non-destructives sont souvent mises en œuvre. Les méthodes actives non-destructives visant à détecter les actinides (^{235}U , ^{239}Pu , ^{238}U ...) sont traditionnellement constituées de deux étapes. La première étape consiste à induire des réactions de fission sur les actinides à l'aide d'un faisceau de particules, tandis que la seconde étape est dédiée à la détection des particules promptes et retardées émises. À la différence des méthodes passives, le déploiement des méthodes actives est complexe en raison de la nécessité du recours à une source de particules interrogatrices.

1.2.2.1 Interrogation neutronique active

L'interrogation neutronique active est une technique de mesure active non-destructive qui utilise une source de neutrons en tant que particules interrogatrices [Jallu11]. Historiquement, les premières mesures par interrogation neutronique active ont été réalisées à l'aide d'une source interrogatrice pulsée de ^{252}Cf (air comprimée ou câble) et consistaient à détecter les neutrons retardés. De nos jours, un générateur de neutrons de type deutérium-tritium est couramment employé comme source de neutrons interrogateurs. Les neutrons de 14 MeV émis par un générateur deutérium-tritium (neutrons issus de réactions de fusion entre des noyaux de deutérium et de tritium) sont le plus souvent ralentis au sein d'une enceinte. Cette dernière est généralement constituée de matériaux légers (graphite et/ou polyéthylène) afin de permettre l'interaction des neutrons avec les actinides qui présentent une forte section efficace de fission thermique, à savoir les actinides fissiles (^{235}U , ^{239}Pu ...) L'interrogation neutronique active permet donc de séparer, durant l'interrogation et la mesure et ce grâce à l'énergie des neutrons, les masses de matière fissile (^{235}U , ^{239}Pu ...) et fertile (^{238}U , ^{240}Pu ...) contenues dans un colis. Les fissions induites, et par conséquent les masses de matière fissiles et fertiles au sein d'un colis, sont généralement quantifiées à l'aide d'un système de détection spécifique permettant le comptage des neutrons prompts et retardés émis suite aux réactions de fission.

Cependant, les performances de cette technique peuvent être limitées lorsqu'on souhaite l'appliquer à certains types de colis. Par exemple, les neutrons interrogateurs et les neutrons de fission peuvent être absorbés dans le cas d'un colis volumineux et bétonné, ce qui explique la difficulté à détecter des actinides centrés dans le colis. En France, de multiples applications industrielles de cette méthode ont été étudiées et souvent mises en œuvre [Passard93, Pérot96, Raoux00]. Cette technique est actuellement exploitée dans l'industrie. On peut citer à titre d'exemple les postes 0 et 2 de l'Atelier de Compactage des Coques et poste 7 des ateliers T1/R1 d'AREVA-NC (La Hague) [Chabert97, Toubon01, Antoni13]. À titre d'illustration, la figure 1.4 présente la cellule SYMETRIC dédiée à la mesure par interrogation neutronique active sur des colis bitumés (CEA Cadarache) [Pérot03, Jallu11]. Nous pouvons également citer la cellule de mesure PROMETHEE 6 du CEA Cadarache [Passard02, Mariani03, Jallu06] qui a d'abord été conçue par simulation puis fabriquée pour réaliser des mesures par interrogation neutronique active sur des fûts de 118 L. La cellule PROMETHEE 6 comporte 88 détecteurs à ^3He et la cellule SYMETRIC en contient 99.



Figure 1.4 : SYMETRIC : cellule dédiée à la mesure par interrogation neutronique active.

1.2.2.2 Interrogation photonique active

L'interrogation photonique active est une technique de mesure active non-destructive utilisant des photons de haute énergie, générés par rayonnement de freinage dans la cible de conversion d'un accélérateur d'électrons, comme particules interrogatrices. La photofission présente un seuil de réaction proche de 6 MeV pour l'ensemble des actinides. Ainsi, seuls les photons ayant une énergie supérieure à ce seuil contribuent à l'interrogation des actinides présents dans le colis. La photofission concerne à la fois les actinides fertiles (^{238}U , ^{240}Pu ...) et les actinides fissiles (^{235}U , ^{239}Pu ...). L'interrogation photonique active permet donc de mesurer la masse globale de matière fissile et fertile dans un colis. À l'origine, cette méthode a été développée en se basant sur la détection des neutrons retardés de photofission [Lyoussi94]. Plus récemment, l'analyse des spectres de gamma retardés obtenus suite à l'interrogation photonique du colis a été étudiée pour discerner les composantes fertiles et fissiles contenues au sein du colis [Gmar00, Carrel07].

La génération de l'impulsion de l'accélérateur d'électrons entraîne une saturation du système de détection des neutrons de fission (flash gamma), généralement constitué de détecteurs à ^3He , et empêche le comptage des neutrons prompts de photofission émis durant l'impulsion. Les réactions (γ , n) se produisant au moment de l'impulsion — dans la cible de conversion et au sein du colis — sont également à l'origine d'un bruit de fond important perturbant la détection des neutrons prompts de fission. C'est pourquoi l'interrogation photonique active s'attache généralement à détecter les neutrons retardés de photofission entre les impulsions du LINAC [Lyoussi94, Jallu99]. À la différence de la technique d'interrogation neutronique active pour laquelle les neutrons interrogateurs sont émis de manière isotrope, le flux interrogateur en interrogation photonique active présente une forte anisotropie dans l'axe du faisceau [Nieschmidt77]. L'interrogation photonique active apporte ainsi une information sur la localisation des actinides au sein du colis, comme l'illustre la figure 1.5. Une autre différence importante entre ces deux techniques réside dans le fait que le

flux de photons de haute énergie peut interroger des masses d'actinides situées au centre de colis denses et volumineux.

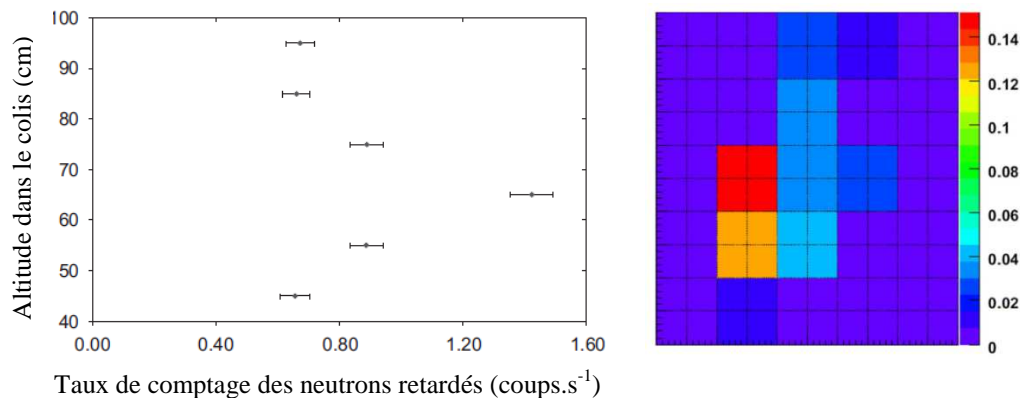


Figure 1.5 : Deux exemples de résultats obtenus grâce à l'interrogation photonique active de colis : comptage neutronique actif [Carrel11b] (à gauche) et tomographie de photofission [Carrel10b] (à droite).

1.2.2.3 La double interrogation

Lors d'une mesure d'interrogation photonique active, des réactions photonucléaires ont lieu dans la cible de conversion de l'accélérateur d'électrons et sont à l'origine de l'émission de neutrons appelés « photoneutrons ». Ces derniers sont souvent considérés comme des particules parasites lors de la mesure d'interrogation photonique active. Cependant, les photoneutrons peuvent également être utilisés comme particules interrogatrices. La possibilité de réaliser simultanément une mesure d'interrogation photonique et une mesure d'interrogation neutronique active a fait l'objet de plusieurs études. Certains auteurs ont rencontré des difficultés techniques dans la mise en œuvre de la double interrogation [Franks82], tandis que d'autres méthodes [Chakhlov99, Jallu99], basées sur l'utilisation de deux cibles — une pour la production de photons et une pour la production de photoneutrons, comme représenté sur la figure 1.6 — présentent quelques inconvénients (difficulté d'approvisionnement de la cible en béryllium destinée à produire les photoneutrons par exemple).

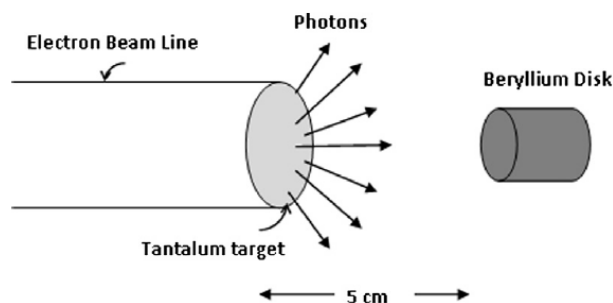


Figure 1.6 : Représentation d'un dispositif à deux cibles [Eshwarappa13].

Cependant, lorsque l'on considère le cas d'une cible de conversion unique irradiée par des électrons de 15 MeV, le flux de photons de haute énergie est orienté vers l'avant et celui de photoneutrons est émis de manière quasi-isotrope. Il est donc envisageable de réaliser séparément la mesure d'interrogation neutronique active et la mesure d'interrogation photonique active sur un colis, en optimisant la position et la géométrie de la cible de conversion et en adaptant le dispositif utilisé pour chacune de ces deux mesures (cible mince pour la mesure d'interrogation photonique active, cible épaisse et cellule thermalisante pour la mesure d'interrogation neutronique active). Une telle méthode permettrait de réaliser la mesure d'interrogation photonique active à l'énergie optimale pour la réaction de photofission. Elle permettrait également de s'affranchir de certaines contraintes propres aux techniques utilisant une cible pour la production photonique et une seconde cible destinée à la production photoneutronique. Dans le cadre de cette thèse, c'est dans cette optique que nous avons dirigé nos recherches.

1.2.2.4 Imagerie photonique haute énergie

L'imagerie photonique haute énergie est une technique active non-destructive qui utilise un accélérateur d'électrons comme source de photons de haute énergie et permet d'analyser qualitativement et quantitativement un colis. Cette technique est basée sur les variations de transmission du flux de photons induites par les différences de densités au sein du colis. L'image du colis est obtenue à l'aide d'un écran de détection positionné à l'arrière du colis. Il est possible d'utiliser une plaque photographique ou un imageur numérique de type EPID (*Electronic Portal Imaging Device*) généralement constitué d'un écran scintillant. Les travaux réalisés dans le cadre de cette thèse ont été effectués à l'aide de l'EPID visible sur la figure 1.7. Cette figure présente également un exemple de dispositif destiné à la réalisation d'images haute énergie de colis de déchets radioactifs (CEA, centre de Grenoble) [Moulin04]. Nous pouvons noter qu'un dispositif entièrement dédié à l'imagerie haute énergie sera bientôt opérationnel sur le site du CEA Cadarache (cellule CINPHONIE située dans l'installation CHICADE).

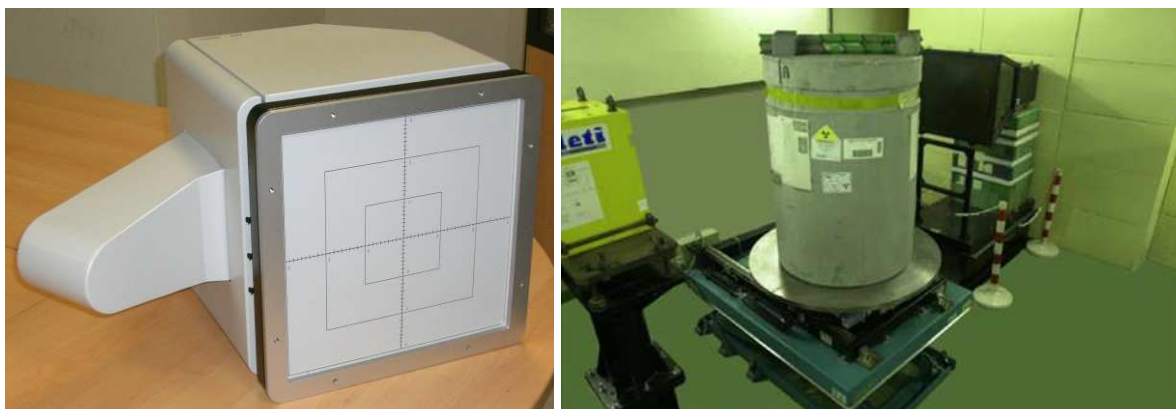


Figure 1.7 : Imagerie numérique de type EPID (à gauche) et exemple de dispositif expérimental d'imagerie haute énergie (à droite).

L'image haute énergie apporte un certain nombre d'informations sur un colis. En guise d'exemples, l'identification du type de déchets contenus dans le colis, la répartition des déchets au sein de ce dernier, et le niveau de remplissage du colis, sont autant d'informations accessibles avec cette méthode, et importantes dans le cadre de la caractérisation d'un colis. Elles permettent notamment d'ajuster les modèles de simulation du colis en question et de déterminer une fonction de transfert reflétant au mieux la réalité expérimentale. À titre d'exemples, la figure 1.8 présente deux images réalisées au cours de cette thèse respectivement pour un fût maquette de 870 L et un colis réel de type CBFC2. Ces images ont été obtenues à l'aide de l'accélérateur d'électrons de l'installation SAPHIR (CEA LIST, centre de Saclay).

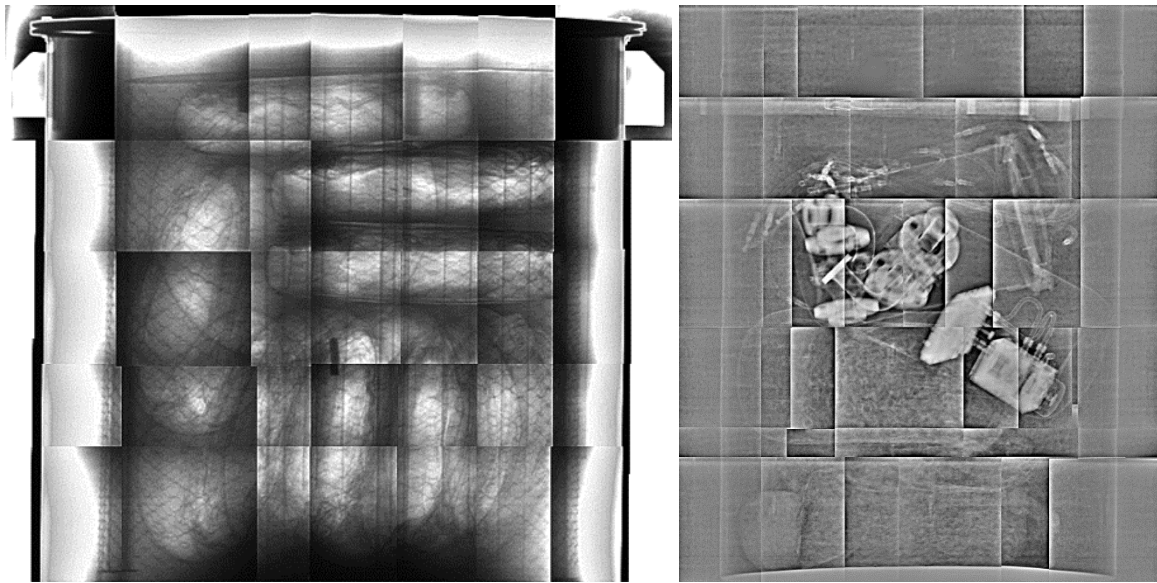


Figure 1.8 : Images haute énergie d'un fût de 870 L contenant des colis de déchets compactés (à gauche) et d'un colis CBFC2 (à droite). Images retraitées à l'aide du logiciel *Photoshop CS5*.

1.3 Conclusions

Les colis de déchets radioactifs présentent une grande diversité et un large panel de techniques permet de les caractériser. Les méthodes destructives sont performantes mais généralement réservées à l'analyse de colis de déchets homogènes ou à la réalisation d'un échantillonnage sur colis hétérogènes. Les méthodes non destructives présentent quant à elles plusieurs avantages par rapport aux méthodes destructives, tels que : la rapidité, le coût, la préservation de l'intégrité du colis, et la représentativité (mesure globale du colis et possibilité de mesurer tous les colis). Les méthodes non destructives passives sont plus simples à mettre en œuvre que les méthodes non-destructives actives. Cependant, dans certaines situations, les méthodes passives deviennent inapplicables et le déploiement des méthodes actives est alors nécessaire. La détection des actinides requiert l'utilisation de techniques basées sur le phénomène de fission induite (INA, IPA). Nous consacrons la suite de ce chapitre à la présentation des fondements physiques inhérents aux techniques étudiées dans le cadre de cette thèse (fission, photofission, photoneutrons).

2. Éléments de physique

Cette partie est consacrée à la présentation des bases de physique spécifiques à ce sujet de thèse et essentielles à la compréhension des chapitres suivants. La méthode développée au cours de ce travail de thèse est fondée sur le principe de la fission nucléaire et repose sur l'utilisation du flux de neutrons délivré par un accélérateur d'électrons. Nous présenterons les principales notions relatives à la réaction de fission et les éléments clés de physique fondamentale sur les photoneutrons.

2.1 La fission nucléaire

2.1.1 Historique de la fission

Deux ans après la découverte du neutron par James Chadwick en 1932 [Chadwick32a, Chadwick32b], Enrico Fermi et son équipe étudient le bombardement de noyaux d'uranium par des neutrons et concluent à la formation d'un nouvel élément lourd de numéro atomique égal à 94 [Fermi34]. Ils le baptisent hésperium. Cette conclusion ne convainc pas les scientifiques de l'époque et Ida Noddack avance l'hypothèse que le noyau pourrait se scinder en plusieurs fragments sous l'impact des neutrons [Noddack34]. N'apportant pas de fondements théoriques à cette hypothèse, cette dernière est ignorée. En 1939, Otto Hahn et Fritz Strassman publient un article dans lequel ils expliquent avoir produit du baryum suite au bombardement d'uranium par des neutrons [Hahn39]. Cette même année, Lise Meitner et Otto Robert Frisch interprètent cette observation comme étant le résultat de la fragmentation de noyaux d'uranium par des neutrons [Meitner39]. Par la suite, Otto Robert Frisch confirmera expérimentalement cette hypothèse [Frisch39]. En 1940, G.N. Flerov et K.A. Petrzhak montrent que la fission de noyaux d' ^{238}U peut survenir sans intervention d'une particule incidente. La fission spontanée est découverte. Les applications potentielles de la réaction de fission nucléaire induite à des fins de production d'énergie et de défense seront ensuite rapidement perçues et feront l'objet d'un engouement important (projet *Manhattan* durant la Seconde Guerre mondiale, ce dernier ayant débouché sur la fabrication des bombes utilisées lors des bombardements d'Hiroshima et de Nagasaki).

2.1.2 Mécanisme de la fission

La réaction de fission correspond à la division d'un noyau atomique lourd en plusieurs fragments. Deux fragments sont produits dans la plupart des cas. La fission peut survenir de manière spontanée ou être induite par une particule incidente, et s'accompagne de l'émission de particules parmi lesquelles des neutrons et des photons. Les neutrons prompts sont émis instantanément après la réaction de fission (entre 10^{-16} s et 10^{-14} s), tandis que les neutrons retardés sont émis de manière différée (entre quelques microsecondes et plusieurs dizaines de secondes), par les produits de fission qui décroissent le plus généralement par désintégration β^- [Raoux00, Lyoussi10]. De même que pour les neutrons prompts, les gamma prompts sont émis instantanément après la fission. En revanche, en comparaison avec les neutrons retardés, l'émission des gamma retardés peut être sensiblement décalée par rapport à l'instant où

survient la fission (émission comprise entre quelques centaines de microsecondes et plusieurs jours après la fission).

La fission survient lorsque la barrière de potentiel due à la compétition entre la force de répulsion électrostatique entre les protons du noyau et la force de liaison nucléaire est franchie [Raoux00]. La fission spontanée correspond au franchissement de cette barrière par un mécanisme quantique : l'effet tunnel. En revanche, la fission induite requiert un apport extérieur d'énergie afin de franchir cette barrière. Cette énergie peut être apportée par un neutron. S'il s'agit d'un neutron thermique (neutron de 25 meV), la barrière est franchie suite au gain de l'énergie de liaison apporté par le neutron au noyau et entraînant la déformation de ce dernier. On parle alors de fission thermique. Les actinides fissionnant par ce mode de fission sont de nombre de masse impair et sont dits fissiles (^{235}U , ^{239}Pu ...). Si l'énergie est apportée par un neutron rapide (énergie de l'ordre du MeV), la barrière est franchie grâce à l'énergie cinétique de la particule incidente et l'on parle alors de fission rapide. Ce mode de fission concerne les actinides fissiles (^{235}U , ^{239}Pu ...) et les actinides ayant un nombre de masse pair qui sont appelés fertiles (^{238}U , ^{240}Pu ...). La fission peut également être induite par un photon. Ce mode de fission est désigné sous le terme de photofission. Cette dernière est régie par le phénomène de résonance géante dipolaire qui intervient essentiellement pour des photons dont l'énergie est comprise entre 12 MeV et 18 MeV sur les noyaux lourds. Cependant, des photons de 6 MeV suffisent pour franchir le seuil de photofission [Lyoussi94, Gmar00, Carrel07]. La photofission concerne les actinides fissiles et fertiles.

2.1.3 Données nucléaires sur la fission

Au sein de ce travail de thèse, nous nous intéresserons à la réaction de fission thermique sur l' ^{235}U et le ^{239}Pu et à celle de fission rapide sur l' ^{238}U . Les sections efficaces de fission thermique sur l' ^{235}U et le ^{239}Pu sont respectivement de 585 barns et 748 barns ; celle de fission rapide sur l' ^{238}U par des neutrons de 1 MeV est d'environ 13,5 millibarns [ENDF/B-VII.1]. La figure 1.9 présente les sections efficaces de fission pour ces différents isotopes. Nous nous intéressons également à la réaction de photofission sur l' ^{235}U , le ^{239}Pu et l' ^{238}U . Les sections efficaces de ces réactions sont présentées sur la figure 1.10.

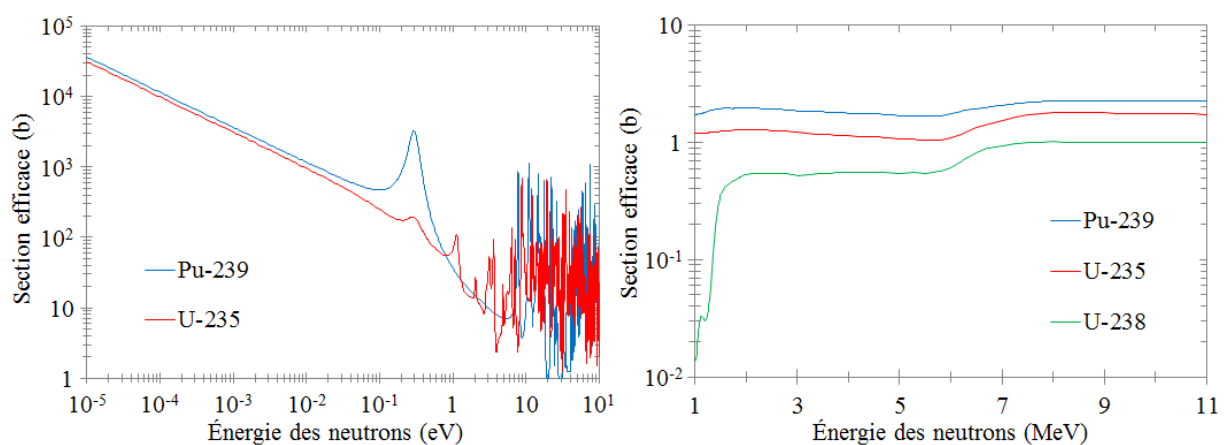


Figure 1.9 : Sections efficaces de fission pour l' ^{235}U , le ^{239}Pu , et l' ^{238}U [ENDF/B-VII.1, Lyoussi10].

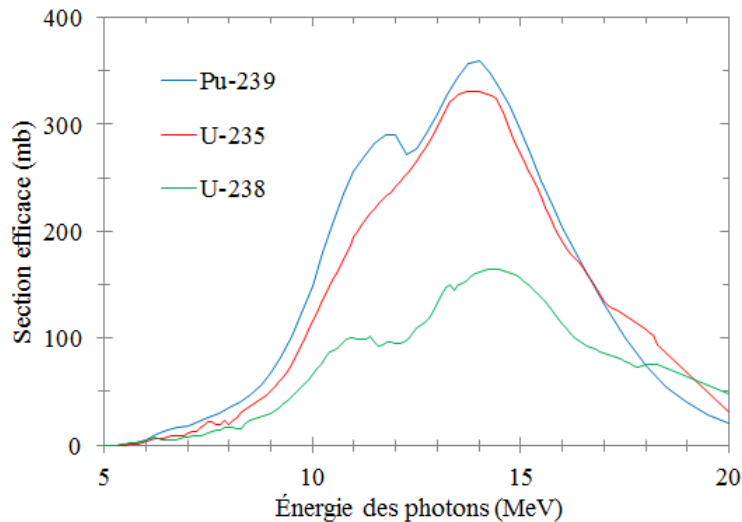


Figure 1.10 : Sections efficaces de photofission pour l' ^{235}U , le ^{239}Pu , et l' ^{238}U [ENDF/B-VII.1].

Les réactions de photofission ont lieu pendant l'impulsion de photons délivrée par l'accélérateur d'électrons. Celles de fission rapide ont lieu quasi-simultanément durant l'impulsion délivrée par le générateur de neutrons. En revanche, les réactions de fission thermique se produisent quelques instants après l'émission des neutrons par la source (quelques centaines de microsecondes à quelques millisecondes). Cette durée nécessaire à la thermalisation des neutrons interrogateurs permet de détecter les neutrons prompts de fission thermique entre les impulsions. Dans le cadre de cette thèse, nous nous attacherons également à la détection des neutrons retardés de fission thermique, de fission rapide, et de photofission.

De manière générale, bien qu'il existe quelques différences en fonction de l'actinide et du mode de fission considéré, le spectre en énergie des neutrons prompts suit une Maxwellienne d'énergie moyenne égale à 2 MeV tandis que celui des neutrons retardés est compris entre 300 keV et 600 keV. À titre d'illustration, la figure 1.11 présente deux exemples de spectres obtenus avec le code de simulation MCNPX : un spectre de neutrons prompts et un spectre de neutrons retardés. Il est également important de noter que les neutrons prompts sont très majoritaires par rapport aux neutrons retardés. Près de 99% des neutrons de fission sont des neutrons prompts, et seulement 1% environ des neutrons retardés. Ces derniers sont généralement classés en six groupes suivant leur temps de demi-vie et le nombre moyen de neutrons retardés émis par fission. Bien qu'elle permette de quantifier le signal retardé mesuré, la classification des neutrons retardés en six groupes repose sur des fondements empiriques. D'autres types de classification peuvent être employés (classification en huit groupes permettant de garder constants les temps de demi-vie des différents groupes, quel que soit l'actinide ayant fissionné).

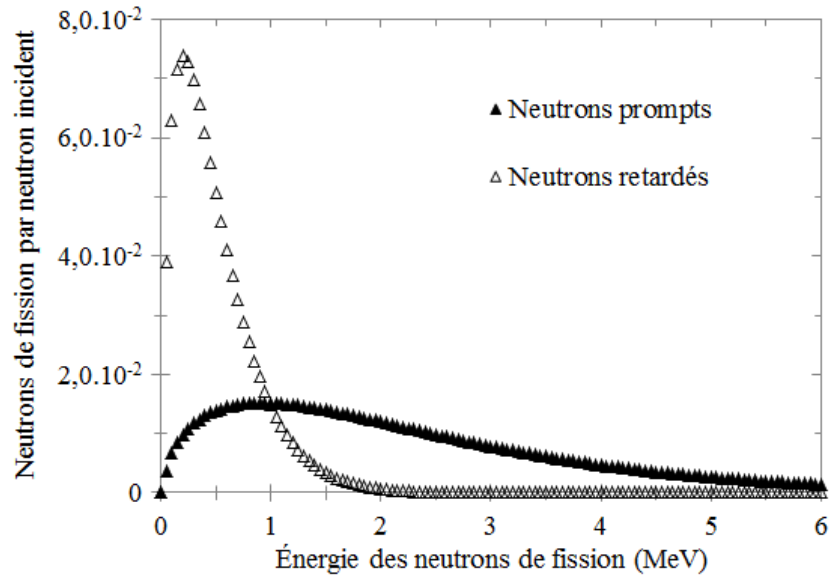


Figure 1.11 : Spectres en énergie des neutrons prompts et retardés de fission thermique sur ^{235}U , obtenus avec le code de simulation MCNPX.

Le nombre moyen de neutrons prompts (ν_p) émis par fission thermique sur ^{235}U et le ^{239}Pu est respectivement de 2,42 et 2,87 [ENDF/B-VII.1]. Les tableaux 1.2 et 1.3 présentent les six groupes temporels de neutrons retardés pour la fission thermique sur ^{235}U , le ^{239}Pu et la fission rapide sur ^{238}U [Waldo81] ; et pour la photofission sur ^{235}U , ^{238}U et le ^{239}Pu [Nikotin66]. Les paramètres de photofission sont présentés pour un spectre de photons dont l'énergie maximale est de 15 MeV. Chaque groupe est caractérisé par un temps de demi-vie ($t_{1/2}$) et un nombre de neutrons retardés émis par fission (noté $\beta_i \nu_r$ et exprimé pour 10^5 fissions). β_i symbolise la fraction de neutrons retardés du $i^{\text{ème}}$ groupe de précurseurs par neutron et ν_r le nombre moyen de neutrons retardés émis par fission. Il est important de spécifier que des évaluations plus récentes des différents paramètres pour les neutrons retardés existent [Dupont08]. Cependant, ces dernières n'ont pas été retenues dans le cadre de cette étude (paramètre ν_r non remesuré).

Groupes	^{235}U		^{238}U		^{239}Pu	
	$t_{1/2}$ (s)	$\beta_i v_r$	$t_{1/2}$ (s)	$\beta_i v_r$	$t_{1/2}$ (s)	$\beta_i v_r$
1	54,58	55	52,51	57,7	54,15	22
2	21,87	366	21,59	608	23,03	192
3	6,03	328	4,99	719	5,59	136
4	2,23	660	1,94	1720	2,13	210
5	0,50	192	0,49	1000	0,62	55
6	0,18	70	0,17	330	0,26	29
Total	-	1671	-	4435	-	644

Tableau 1.2 : Classification des neutrons retardés de fission thermique pour l' ^{235}U et le ^{239}Pu , et de fission rapide pour l' ^{238}U (valeurs de $\beta_i v_r$ exprimées pour 10^5 fissions) [Waldo81].

Groupes	^{235}U		^{238}U		^{239}Pu	
	$t_{1/2}$ (s)	$\beta_i v_r$	$t_{1/2}$ (s)	$\beta_i v_r$	$t_{1/2}$ (s)	$\beta_i v_r$
1	54,7	52	56,2	61	54,0	22
2	20,3	193	21,3	489	20,6	75
3	5,45	146	5,50	545	5,7	66
4	2,01	354	2,15	970	1,94	105
5	0,50	134	0,70	552	0,58	54
6	0,19	83	0,19	503	0,20	38
Total	-	962	-	3120	-	360

Tableau 1.3 : Classification des neutrons retardés de photofission pour l' ^{235}U , l' ^{238}U et le ^{239}Pu (valeurs de $\beta_i v_r$ exprimées pour 10^5 photofissions) [Nikotin66].

Au sein de notre étude, nous nous intéresserons également à la détection des gamma retardés comme mesure complémentaire potentielle. Nous pouvons noter que l'énergie d'un gamma retardé est spécifique à un produit de fission donné. Le spectre en énergie des gamma retardés est complexe et s'étend jusqu'à 5 MeV. Les émetteurs de gamma retardés couvrent une gamme de durée de vie, bien plus large que celle des neutrons retardés, allant de la centaine de microsecondes à plusieurs années.

2.2 Les photoneutrons

En 1934, J. Chadwick et M. Goldhaber montrent que des neutrons sont émis à la suite du bombardement de noyaux de deutérium par des photons de plusieurs MeV [Chadwick34c]. Leur publication permettra de fonder un nouveau champ de la physique consacré à l'étude des interactions entre les photons et les noyaux atomiques : la physique photonucléaire. De telles interactions peuvent engendrer l'émission de différents types de photoparticules, parmi lesquelles des protons et des neutrons, respectivement désignés sous les termes photoprotons et photoneutrons.

Il est intéressant de souligner que le nombre de photoprotons émis dans la gamme d'énergie de photons étudiée est négligeable. En effet, la probabilité qu'une particule chargée réussisse à franchir la barrière coulombienne d'un noyau lourd est faible [Courant51]. Cet effet ne se traduit pas par un seuil de réaction (γ, p) plus élevée que celui de réaction (γ, n) pour les noyaux lourds, ces deux seuils étant proches [AIEA00], mais par une importante différence de leurs sections efficaces [Giacri05]. Dans le cadre de cette thèse, nous nous intéresserons exclusivement aux photoneutrons générés par un accélérateur d'électrons.

2.2.1 Réactions photonucléaires

La cible de conversion d'un accélérateur d'électrons est généralement constituée d'un matériau lourd (tungstène ou tantale par exemple). Les électrons bombardant la cible sont freinés et perdent leur énergie par le phénomène de *Bremsstrahlung* (rayonnement de freinage). Un spectre continu de photons est ainsi émis. Ces photons peuvent à leur tour interagir avec les noyaux lourds de la cible par réactions photonucléaires. Des photoneutrons sont ainsi produits. Différents mécanismes permettent d'expliquer l'émission de ces derniers. Le mécanisme majoritaire dépend de l'énergie des photons [Vylet01].

Pour une énergie de photon incident comprise entre 10 MeV et 30 MeV, la résonance géante dipolaire est le mécanisme responsable de l'émission de l'essentiel de la production des photoneutrons. Une description simple de cette résonance a été fournie par M. Goldhaber en 1948 [Goldhaber48]. Au cours de cette résonance, le photon incident interagit avec le noyau dans sa globalité, l'ensemble des neutrons et l'ensemble des protons se déplaçant en direction opposée au sein du noyau. Le noyau excité revient ensuite dans son état fondamental par émission de photoparticules.

Dans la gamme d'énergie s'étendant de 30 MeV à 300 MeV, la probabilité que le photon interagisse avec une paire neutron-proton du noyau est importante. C'est l'effet quasi-deutéron, également connu sous le nom d'effet pseudo-deutéron, modèle proposé par J. S. Levinger en 1951 [Levinger51]. La photodésintégration du quasi-deutéron entraîne l'éjection de chacune des deux particules qui le compose. Un photoneutron est ainsi émis.

En 1947, R. Serber suggère que les interactions des particules de haute énergie avec les noyaux doivent être considérées comme des interactions individuelles entre les particules incidentes et les nucléons des noyaux [Serber47]. En 1949, E. M. McMillan, J. M. Peterson et R. S. White mettent en évidence la production de mésons par une cible de freinage en platine

irradiée par des électrons de 335 MeV [McMillan49]. L'effet au cours duquel l'interaction individuelle d'un photon de haute énergie avec un nucléon du noyau entraîne la production de mésons est nommé effet photoméson. Plus spécifiquement, dans le cas où les mésons produits sont des pions, il est d'usage de parler d'effet photopion. Cet effet ne peut avoir lieu que si le photon apporte une énergie supérieure à la masse du pion, soit $140 \text{ MeV}/c^2$ environ. La réabsorption d'un photopion au sein du noyau est à l'origine d'une cascade intranucléaire. Cette cascade consiste en une succession de collisions entre particules dans le noyau. Les particules de haute énergie issues de cette cascade s'échappant du noyau, peuvent à leur tour entraîner une cascade au sein d'un autre noyau, c'est la cascade extranucléaire. Les noyaux au sein desquels des cascades ont eu lieu subsistent dans un état excité. D'après un modèle développé par V. Weisskopf en 1937, un noyau excité peut se désexciter en émettant des particules par un processus d'évaporation [Weisskopf37]. Des neutrons peuvent ainsi être émis au cours de ces différentes cascades ou au cours de phénomènes d'évaporation.

La figure 1.12 montre l'allure de la section efficace photonucléaire totale en fonction de l'énergie du photon. Parmi les trois mécanismes à l'origine de l'émission de photoneutrons que nous avons décrits précédemment, il apparaît que la résonance géante dipolaire présente la section efficace la plus élevée, et ce pour une énergie de photon comprise entre 13 MeV et 18 MeV pour les noyaux lourds [Xu10]. Dans le cadre de cette thèse, nous allons nous intéresser à des accélérateurs délivrant des électrons dont l'énergie est comprise entre 10 MeV et 20 MeV. Nous nous intéresserons donc principalement aux photoneutrons de résonance géante dipolaire.

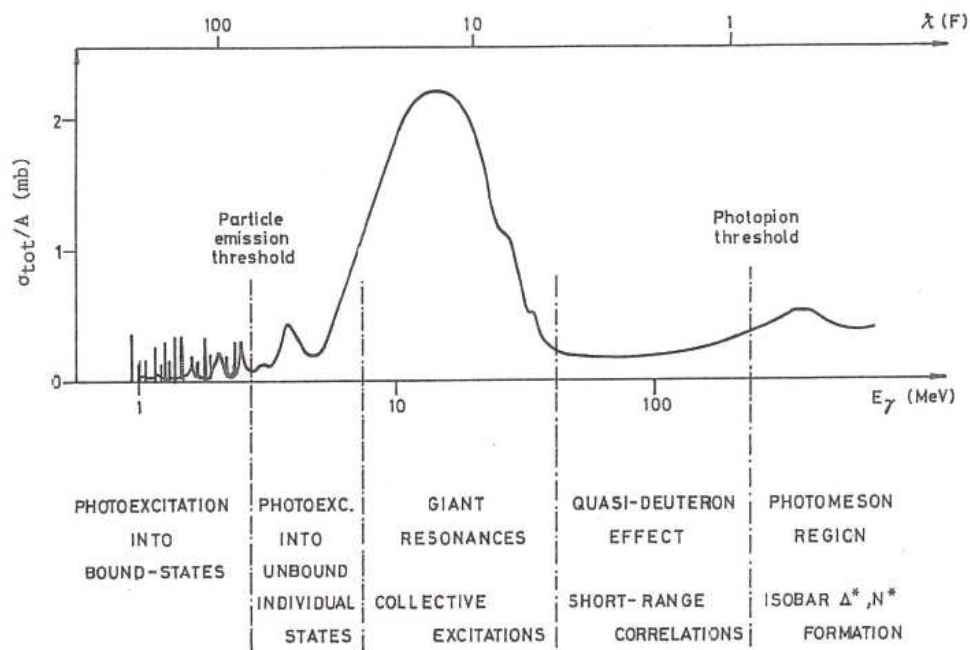


Figure 1.12 : Section efficace photonucléaire totale par nucléon en fonction de l'énergie du photon ou de sa longueur d'onde réduite [Findlay90].

2.2.2 Caractéristiques des photoneutrons

Les photoneutrons de résonance géante dipolaire peuvent naître par deux processus. En 1937, V. Weisskopf explique que les neutrons émis par un noyau excité, suite à l'absorption d'un photon par le noyau, sont émis par un processus d'évaporation [Weisskopf37]. En 1951, E. D. Courant postule qu'une émission directe, sans formation d'un noyau composé, est possible [Courant51]. En 1956, D. H. Wilkinson donne une description de ce processus qu'il qualifie de résonance directe [Wilkinson56].

2.2.2.1 Distribution angulaire

Les photoneutrons émis par évaporation sont caractérisés par une distribution angulaire isotrope [Weisskopf37]. Cependant, les photoneutrons directs voient leur distribution angulaire varier en $\sin^2(\theta)$ [Courant51], θ étant l'angle entre la direction du photon incident et celle du neutron émis. Autrement dit, l'émission d'un photoneutron d'émission directe est la plus probable dans une direction perpendiculaire à l'axe du photon incident. En 1960, F. Tagliabue et J. Goldemberg ont synthétisé et confronté les résultats de précédentes études sur la distribution angulaire des photoneutrons [Tagliabue60]. Ils expliquent les désaccords entre les résultats de ces études par des différences entre les protocoles expérimentaux suivis. En 1966, G. S. Mutchler réalise un travail de thèse de doctorat au sein duquel il s'intéresse à la distribution angulaire des photoneutrons émis par différents noyaux lourds [Mutchler66]. Il mesure les distributions angulaires anisotropes des photoneutrons directs émis par différents noyaux. Ses résultats expérimentaux confirment également une distribution angulaire isotrope pour les photoneutrons d'évaporation. Au second chapitre, nous étudierons en détail, par simulation et expérimentalement, la distribution angulaire des photoneutrons émis par la cible de conversion en tungstène ou en tantale d'un accélérateur d'électrons de 14 MeV ou 17 MeV.

2.2.2.2 Spectre en énergie

Le spectre en énergie des photoneutrons émis par une cible de conversion est décrit par l'équation suivante [Tosi91]

$$\frac{dN}{dE} = \frac{E}{T^2} \exp\left(\frac{-E}{T}\right) + K \ln \left[\frac{E_{max}}{E + S_n} \right]$$

où :

- E correspond à l'énergie du photoneutron en MeV ;
- S_n est l'énergie de liaison du photoneutron en MeV ;
- E_{max} représente l'énergie maximale des photons en MeV ;
- K est un coefficient de normalisation ;
- T correspond à la température nucléaire du noyau en MeV.

La température nucléaire du noyau représente l'énergie la plus probable des photoneutrons émis. Sa valeur est d'environ 0,5 MeV pour un noyau de tantale [Liu95] et

pour un noyau de tungstène [Tosi91]. Le premier terme du membre de droite est un spectre de Maxwell décrivant la contribution des photoneutrons d'évaporation tandis que le second terme du même membre correspond à celle des photoneutrons émis par interaction directe. Des exemples de spectres de photoneutrons générés suite à l'irradiation d'une cible de plomb pour une énergie d'électrons de 45 MeV, publiées par H.-B. Xu et son équipe, sont présentés sur la figure 1.13. Ces derniers ont comparé leur résultat de simulation avec celui publié par l'équipe de Petwal [Petwal07], et avec des données expérimentales provenant de l'AIEA.

Le spectre en énergie des photoneutrons émis suite à l'irradiation d'une cible de conversion, bombardée par des électrons entre 10 et 20 MeV, sera donc une superposition de deux composantes. La composante basse énergie — majoritaire — sera constituée d'un spectre de Maxwell présentant un maximum à 0,5 MeV (contribution des neutrons d'évaporation), tandis que la composante haute énergie — minoritaire (environ 14% [Mutchler66]) — apparaîtra pour des énergies d'environ 4 MeV ou 5 MeV (contribution des neutrons directs). Différents auteurs s'accordent sur une valeur moyenne du spectre en énergie des photoneutrons voisine de 1 MeV [Facure05, Huang05, Sáfár94, Xu10, Benites-Rengifo13].

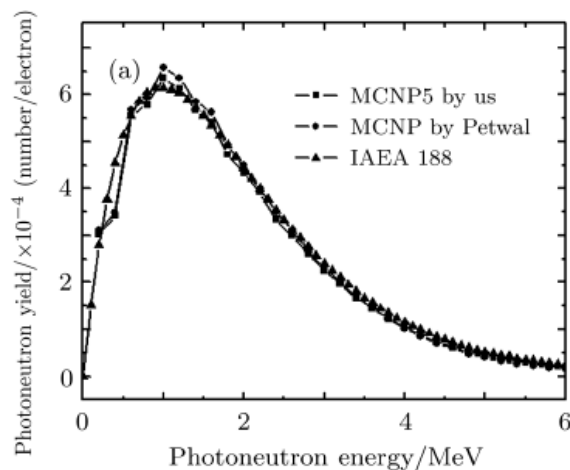


Figure 1.13 : Exemples de spectre en énergie de photoneutrons émis par une cible de plomb irradiée par des électrons de 45 MeV [Xu10].

CHAPITRE 2 : CONNAISSANCE DU FLUX DE PHOTONEUTRONS

La maîtrise de la technique d'interrogation neutronique active, réalisée avec un accélérateur d'électrons en tant que générateur de neutrons, requiert une connaissance fine du flux de photoneutrons émis. Les principaux fondements théoriques sur les photoneutrons ont été présentés au chapitre précédent. L'objectif de ce second chapitre est d'approfondir la connaissance du flux interrogateur, puis d'optimiser ce flux (maximisation de la production photoneutronique et minimisation de la production de photons de plus de 6 MeV) dans l'objectif de repousser les limites de l'interrogation neutronique active. Nous présentons d'abord l'étude par simulation dédiée à la caractérisation et à l'optimisation du flux photoneutronique délivré par un accélérateur d'électrons. Cette étude a été réalisée en utilisant conjointement les codes de simulation Monte Carlo MCNPX et TRIPOLI-4 (développés respectivement aux États-Unis par le *Los Alamos National Laboratory* et en France par le CEA). Enfin, nous caractérisons expérimentalement le flux de photoneutrons généré par deux accélérateurs d'électrons à l'aide d'une méthode développée au cours de ce travail de thèse reposant sur la méthode d'activation neutronique.

1. Caractérisation du flux de photoneutrons par simulation

Préalablement à la présentation de notre étude par simulation dédiée à la caractérisation du flux de photoneutrons par simulation, nous souhaitons attirer l'attention du lecteur sur les points techniques suivants. Les évaluations de données nucléaires utilisées par les codes de simulation MCNPX et TRIPOLI-4 sont les mêmes (bibliothèques internationales au format ENDF-6). Cependant, les données nucléaires sur les particules en voie de sortie (énergies et angles de sortie des interactions) sont directement issues des évaluations pour TRIPOLI-4 alors qu'elles sont issues d'un module de traitement (module ACE du code NJOY) pour MCNPX. Cette différence entre les deux codes peut potentiellement être à l'origine de différences d'interprétation des données nucléaires, dans le cas des réactions neutroniques comme dans le cas des réactions photonucléaires. Nous pouvons également mentionner que TRIPOLI-4 permet de simuler le transport des électrons, des photons, des neutrons et des positrons, alors que MCNPX permet de simuler une plus grande variété de particules (plusieurs dizaines de particules et d'ions lourds). Ces deux codes se distinguent également par les techniques de réduction de variance qu'ils proposent. Malgré des discussions avec différentes personnes de l'équipe de développement du code de calcul MCNPX du *Los Alamos National Laboratory* — dont l'un des fondateurs du code (J.S. Hendricks) — et une étude par simulation complémentaire, il n'a pas été possible de conclure avec certitude sur le fait que la composante de neutrons directs soit prise en compte dans les simulations ou non. Cependant, l'hypothèse la plus vraisemblable à laquelle ce travail de thèse a permis d'aboutir, est que les photoneutrons directs et les photoneutrons d'évaporation résulteraient d'une modélisation « globale ». Cela signifierait que les sections efficaces photonucléaires tiendraient compte indifféremment des neutrons d'évaporation et des neutrons directs, et que l'hypothèse de distribution angulaire isotrope soit retenue pour

l'ensemble des neutrons générés (non prise en compte de la distribution angulaire anisotrope en $\sin^2(\theta)$ des neutrons directs).

Notre étude de caractérisation du flux de photoneutrons a été structurée selon les trois principales caractéristiques suivantes, à savoir : spectre en énergie, distribution angulaire, et intensité moyenne d'émission. Cette étude a été réalisée en considérant le cas d'une cible de conversion en tantale ou en tungstène irradiée par des électrons dont l'énergie est comprise entre 10 MeV et 20 MeV (électrons monoénergétiques). Sauf indication contraire, la cible modélisée présente une épaisseur d'1 cm et un diamètre de 5 cm, et les sections efficaces photonucléaires utilisées proviennent de la bibliothèque ENDF/B-VII. Les incertitudes statistiques à un sigma ne sont représentées sur les figures par des barres d'erreurs que lorsqu'elles excèdent la taille des symboles. Enfin, il est important de préciser que nous avons vérifié que les écarts potentiels entre les résultats de simulation MCNPX et TRIPOLI-4 mettant en jeu les photoneutrons ne pouvaient être attribués à des différences de production photonique dans la cible de tungstène ou de tantale, les deux codes ayant apporté des résultats identiques en termes de production de photons dans la cible.

1.1 Spectre en énergie

Nous avons déterminé le spectre en énergie des photoneutrons en simulant une sphère autour de la cible de conversion et en comptant le nombre de photoneutrons traversant la sphère par intervalle d'énergie de 200 keV. La figure 2.1 montre quatre spectres en énergie calculés avec MCNPX. Il s'agit des spectres en énergie des photoneutrons émis par une cible de tungstène irradiée par des électrons de 12 MeV, 14 MeV, 16 MeV ou 18 MeV. L'allure de ces spectres simulés est conforme à la théorie. Ces courbes sont de type Maxwellienne. Le maximum est atteint pour une énergie de 0,5 MeV et le calcul de l'énergie moyenne donne une valeur d'environ 1 MeV quelle que soit l'énergie des électrons, conforme à celle retrouvée au sein de la littérature [Facure05, Huang05, Sáfár94, Xu10, Benites-Rengifo13].

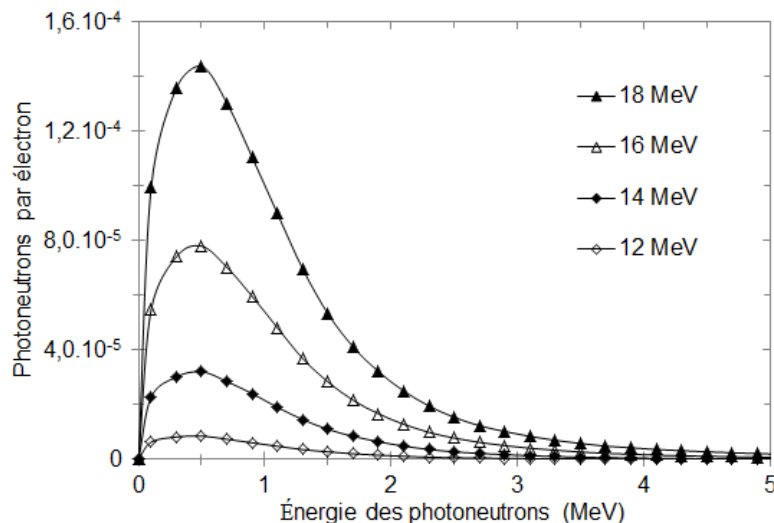


Figure 2.1 : Spectres en énergie des photoneutrons émis par une cible de tungstène irradiée par des électrons de 12 MeV, 14 MeV, 16 MeV, ou 18 MeV. Résultats obtenus avec MCNPX.

Nous avons ensuite procédé à la comparaison des spectres en énergie des photoneutrons obtenus avec MCNPX et TRIPOLI-4. La figure 2.2 compare les spectres en énergie obtenus avec ces deux codes dans le cas d'une cible de tantale irradiée par des électrons de 15 MeV. Cette figure présente également un agrandissement de la région basse énergie du spectre obtenu avec MCNPX (calcul du nombre de photoneutrons traversant la sphère modélisée autour de la cible par intervalle d'énergie de 20 keV). Bien que ces résultats indiquent des différences en termes d'intensité moyenne d'émission entre MCNPX et TRIPOLI-4 pour le cas de la cible de tantale à cette énergie d'électrons, les spectres en énergie déterminés avec les deux codes présentent une allure similaire et une même énergie moyenne de près d'1 MeV. Cependant, le spectre à basse énergie (en deçà de 0,5 MeV) présente une allure qui n'est pas celle d'un spectre de Maxwell-Boltzmann. Les deux codes permettant de reproduire cet effet, des erreurs dans les données photonucléaires contenues dans l'évaluation ENDF/B-VII semblent en être la cause.

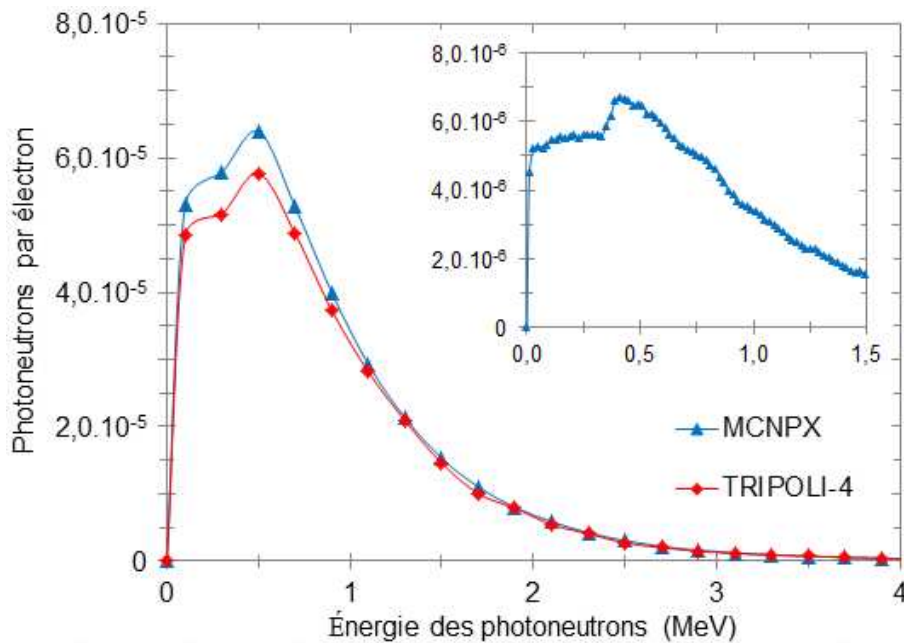


Figure 2.2 : Spectres en énergie des photoneutrons émis par une cible de tantale irradiée par des électrons de 15 MeV. Comparaison des résultats obtenus avec MCNPX et TRIPOLI-4 et agrandissement de la région basse énergie du spectre MCNPX.

Nous avons également comparé les résultats obtenus avec MCNPX et TRIPOLI-4 pour le calcul du spectre en énergie des photoneutrons émis par une cible de tungstène bombardée par des électrons de 15 MeV. Ces résultats sont présentés sur la figure 2.3. Comme précédemment, la figure présente également un agrandissement de la région basse énergie du spectre obtenu avec MCNPX. Bien que des différences entre MCNPX et TRIPOLI-4 apparaissent en termes d'intensité moyenne d'émission des photoneutrons émis par la cible de tungstène à cette énergie d'électrons, les spectres obtenus avec les deux codes présentent de nouveau un bon accord tant par leur allure que par leur énergie moyenne

d'1 MeV. Nous pouvons aussi noter que l'allure du spectre dans sa partie basse énergie est cette fois presque conforme à la théorie.

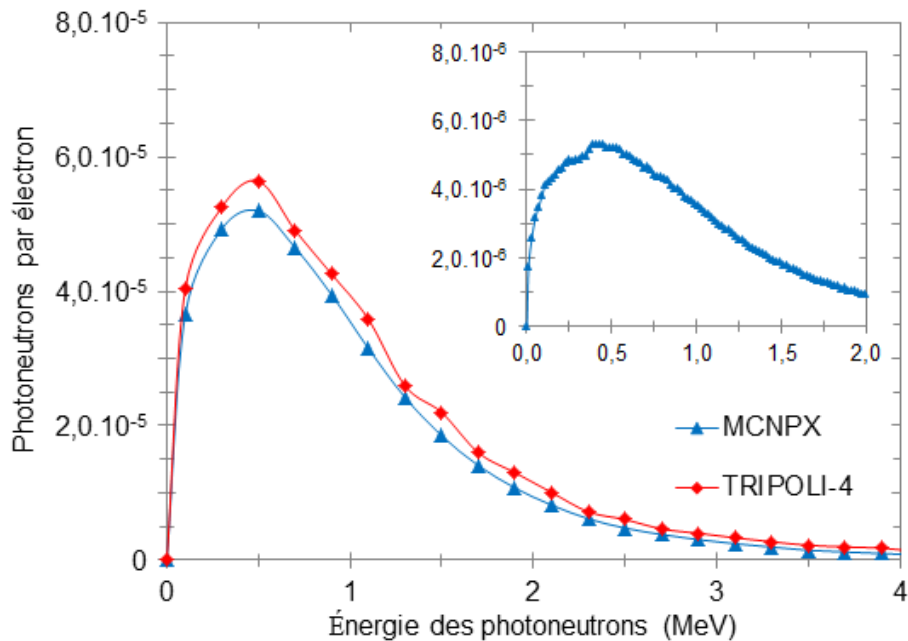


Figure 2.3 : Spectres en énergie des photoneutrons émis par une cible de tungstène irradiée par des électrons de 15 MeV. Comparaison des résultats obtenus avec MCNPX et TRIPOLI-4 et agrandissement de la région basse énergie du spectre MCNPX.

1.2 Distribution angulaire

Afin de déterminer la distribution angulaire des photoneutrons émis par la cible de conversion, nous avons segmenté la sphère entourant la cible en angle polaire de 4° . Ce calcul a été réalisé avec MCNPX en utilisant l'option FRV de la carte FT afin de fixer l'angle polaire référence (0°) dans le sens d'émission des électrons. En considérant un segment angulaire $[\alpha, \beta]$, α étant l'angle le plus petit et β l'angle le plus grand, le nombre de photoneutrons traversant le segment angulaire $[\alpha, \beta]$ a été divisé par $2\pi[\cos(\alpha) - \cos(\beta)]$ afin de le normaliser par stéradian. La figure 2.4 expose les distributions angulaires obtenues pour une cible de tantale et une cible de tungstène bombardée par des électrons de 15 MeV.

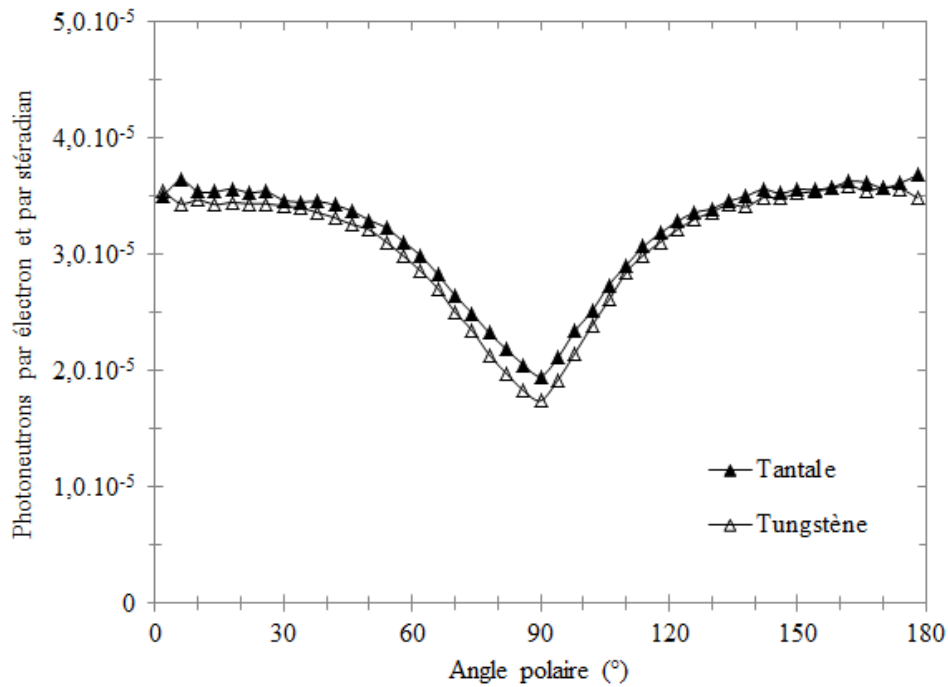


Figure 2.4 : Distribution angulaire des photoneutrons émis par une cible de tungstène ou de tantale irradiée par des électrons de 15 MeV (cible cylindrique, épaisseur d'1 cm et diamètre de 5 cm). Résultats obtenus avec MCNPX.

De manière générale, la distribution angulaire des photoneutrons émis par la cible de tungstène et la cible de tantale présente une allure similaire. Un creux dans la distribution centré sur l'angle de 90° est mis en évidence. Près de deux fois moins de neutrons sont émis perpendiculairement à l'axe des électrons irradiant la cible. Nous avons réalisé des simulations complémentaires qui ont permis d'expliquer l'anisotropie observée. Les neutrons émis dans le sens du diamètre ont une forte probabilité de s'échapper de la cible avec une autre direction. Afin d'observer dans quelle mesure ces effets de géométrie de la cible dégradent l'isotropie de la distribution angulaire, nous avons réalisé de nouveau ces simulations pour des cibles de différents diamètres. À titre d'exemple, la distribution angulaire apparaît isotrope lorsque l'on considère une cible d'1 cm de diamètre. Ce résultat montre que, quand bien même les neutrons sont émis de manière isotrope au moment de leur création, la géométrie de la cible a un impact important sur la distribution angulaire des neutrons sortant de cette dernière et doit être prise en compte. Cependant, lorsque la cible est placée au sein d'une cellule thermalisante telle que celle d'une cellule de mesure d'interrogation neutronique active, une description isotrope de la distribution angulaire des photoneutrons peut être retenue en première approximation. Nous pouvons aussi souligner que l'atténuation à 90° dans la distribution angulaire apparaît plus prononcée pour la cible de tungstène que celle de tantale en raison de la différence de masse volumique de ces deux matériaux (16,4 g/cm³ pour le tantale et 19,3 g/cm³ pour le tungstène). Cet effet étant également présent pour les neutrons émis vers l'avant (entre 0° et 60°), nous avons cherché à localiser les réactions photonucléaires à l'origine de la production des photoneutrons au sein de la cible de conversion. Nous avons divisé une cible de conversion en tungstène irradiée par

des électrons de 15 MeV en portions de 0,5 mm d'épaisseur et calculé le taux de production (γ, xn) dans chacune des portions. Nos résultats sont visibles sur la figure 2.5. Nous montrons ainsi que le taux de production (γ, xn) est maximal à une profondeur de près d'1 mm. Dans le cas d'une cible d'1 cm d'épaisseur, les réactions à l'origine de la création des photoneutrons étant donc essentiellement localisées en entrée de cible. Les interactions des photoneutrons dans la cible expliquent que l'anisotropie de la distribution angulaire des photoneutrons soit plus importante pour le cas de la cible de tungstène que pour celle de tantale (masse volumique du tungstène supérieure à celle du tantale).

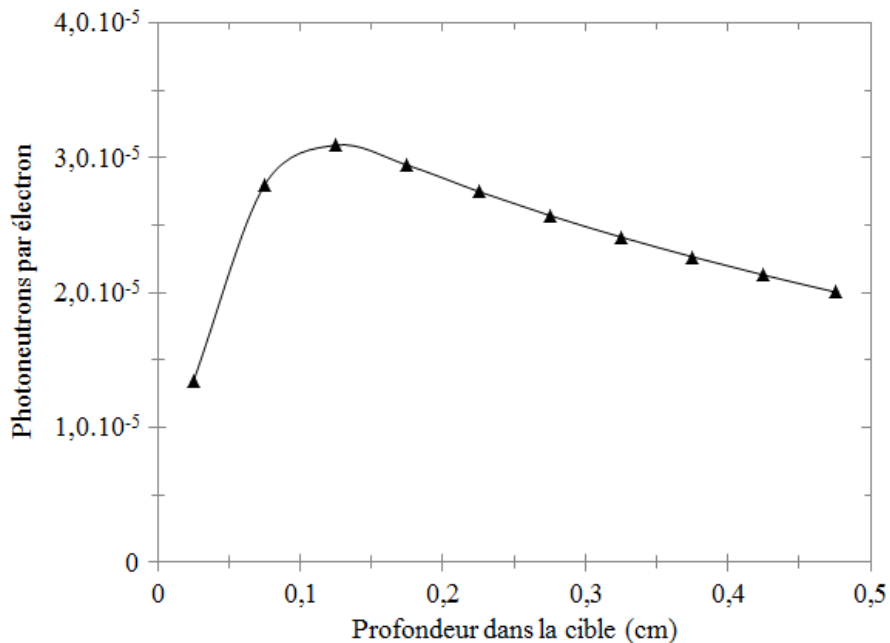


Figure 2.5 : Taux de production (γ, xn) en fonction de la profondeur dans une cible de tungstène irradiée par des électrons de 15 MeV. Résultats obtenus avec MCNPX.

1.3 Intensités moyennes d'émission

Les intensités moyennes d'émission ont été calculées à partir du taux de production (γ, xn) dans la cible de conversion. Soulignons que nous avons vérifié par simulation que la contribution des réactions ($n, 2n$) à la production de neutrons par la cible est négligeable dans le cadre de cette étude. Le nombre de photoneutrons émis par seconde par l'accélérateur de l'installation SAPHIR est obtenu en multipliant le résultat du calcul de taux de production (γ, xn) par le nombre d'électrons délivré par l'accélérateur par seconde (courant crête de 100 mA, soit $6,25 \cdot 10^{17}$ électrons par seconde), par la durée de l'impulsion (2,5 μ s), et par la fréquence à laquelle les impulsions sont délivrées (50 Hz). Il est important de mentionner que le tantale naturel est entièrement composé d'un unique isotope, le ^{181}Ta , alors que le tungstène naturel est composé de cinq isotopes : le ^{180}W (0,12%), le ^{182}W (26,30%), le ^{183}W (14,28%), le ^{184}W (30,70%), et le ^{186}W (28,60%) [AIEA00]. Pour ces différents isotopes et dans la gamme d'énergie de notre étude, les réactions ($\gamma, 3n$) ne peuvent survenir du fait de leurs seuils en énergie élevés (situés entre 20,36 MeV pour le ^{186}W et 23,57 MeV pour le ^{180}W), les

réactions $(\gamma, \alpha n)$ sont très improbables compte tenu de leur très faibles sections efficaces (inférieures à 1 mb à 20 MeV), et l'émission de photoprotons par réaction (γ, p) est fortement limitée par la barrière coulombienne des différents isotopes du tungstène et du tantale. Le taux de production (γ, xn) peut ainsi être décomposé comme suit : $(\gamma, xn) = (\gamma, n) + 2(\gamma, 2n)$. Remarquons que la multiplicité neutronique est incluse dans cette équation. Nous attirons l'attention du lecteur sur le fait que la section efficace (γ, xn) est qualifiée de section efficace photoneutronique de production dans la littérature [AIEA00] et inclut à ce titre les multiplicités neutroniques, à la différence de la section efficace (γ, sn) qualifiée de section efficace photoneutronique totale. Nous avons procédé à deux comparaisons. Nous avons d'abord comparé les résultats de simulation MCNPX des intensités d'émission photoneutronique moyenne délivrées par une cible de tungstène obtenus à partir de calculs de taux de production (γ, xn) réalisés avec deux bibliothèques de sections efficaces photonucléaires différentes (CNDC et ENDF/B-VII), et ensuite comparé les résultats obtenus en calculant ces intensités avec un taux de production (γ, xn) et un taux de production reconstitué manuellement $((\gamma, n) + 2(\gamma, 2n))$ à partir des taux de réaction (γ, n) et $(\gamma, 2n)$ avec une même bibliothèque (CNDC). Ces calculs ont été réalisés pour une énergie d'électrons allant de 10 MeV à 20 MeV. Nos résultats sont rassemblés dans les tableaux 2.1 et 2.2. Précisons que les incertitudes statistiques à un sigma associées à ces calculs sont inférieures à 0,2%.

Énergie des électrons (MeV)	ENDF/B-VII	CNDC	$\frac{\text{ENDF/B-VII}}{\text{CNDC}}$
10	$6,56 \cdot 10^8$ n/s	$4,08 \cdot 10^8$ n/s	1,61
11	$1,77 \cdot 10^9$ n/s	$1,25 \cdot 10^9$ n/s	1,41
12	$4,26 \cdot 10^9$ n/s	$3,39 \cdot 10^9$ n/s	1,26
13	$9,09 \cdot 10^9$ n/s	$7,80 \cdot 10^9$ n/s	1,16
14	$1,70 \cdot 10^{10}$ n/s	$1,53 \cdot 10^{10}$ n/s	1,11
15	$2,84 \cdot 10^{10}$ n/s	$2,62 \cdot 10^{10}$ n/s	1,08
16	$4,34 \cdot 10^{10}$ n/s	$4,09 \cdot 10^{10}$ n/s	1,06
17	$6,14 \cdot 10^{10}$ n/s	$5,86 \cdot 10^{10}$ n/s	1,05
18	$8,19 \cdot 10^{10}$ n/s	$7,87 \cdot 10^{10}$ n/s	1,04
19	$1,05 \cdot 10^{11}$ n/s	$1,01 \cdot 10^{11}$ n/s	1,03
20	$1,28 \cdot 10^{11}$ n/s	$1,24 \cdot 10^{11}$ n/s	1,03

Tableau 2.1 : Intensités moyennes du flux de photoneutrons émis par une cible de tungstène, calculées avec MCNPX à partir de taux de production (γ, xn) avec les sections efficaces d'ENDF/B-VII et de CNDC.

Énergie des électrons (MeV)	$(\gamma, n) + 2(\gamma, 2n)$	(γ, xn)	$\frac{(\gamma, n) + 2(\gamma, 2n)}{(\gamma, xn)}$
10	$1,35 \cdot 10^9$ n/s	$4,08 \cdot 10^8$ n/s	3,31
11	$3,26 \cdot 10^9$ n/s	$1,25 \cdot 10^9$ n/s	2,61
12	$6,81 \cdot 10^9$ n/s	$3,39 \cdot 10^9$ n/s	2,01
13	$1,29 \cdot 10^{10}$ n/s	$7,80 \cdot 10^9$ n/s	1,65
14	$2,23 \cdot 10^{10}$ n/s	$1,53 \cdot 10^{10}$ n/s	1,46
15	$3,54 \cdot 10^{10}$ n/s	$2,62 \cdot 10^{10}$ n/s	1,35
16	$5,23 \cdot 10^{10}$ n/s	$4,09 \cdot 10^{10}$ n/s	1,28
17	$7,23 \cdot 10^{10}$ n/s	$5,86 \cdot 10^{10}$ n/s	1,23
18	$9,48 \cdot 10^{10}$ n/s	$7,87 \cdot 10^{10}$ n/s	1,20
19	$1,19 \cdot 10^{11}$ n/s	$1,01 \cdot 10^{11}$ n/s	1,18
20	$1,45 \cdot 10^{11}$ n/s	$1,24 \cdot 10^{11}$ n/s	1,17

Tableau 2.2 : Intensités moyennes du flux de photoneutrons émis par une cible de tungstène, calculées avec MCNPX à partir de taux de production (γ, xn) ou $(\gamma, n) + 2(\gamma, n)$ avec les sections efficaces de CNDC.

Les intensités moyennes d'émission calculées à partir de taux de production (γ, xn) avec les sections efficaces d'ENDF/B-VII ou CNDC présentent des écarts qui diminuent lorsque l'énergie des électrons augmente. Ces écarts sont importants à basse énergie (écarts de plusieurs dizaines de pourcents) mais restent inférieurs à 10% pour une énergie d'électrons comprise entre 15 MeV et 20 MeV. Les intensités moyennes d'émission calculées à partir de taux de production $(\gamma, n) + 2(\gamma, 2n)$ ou (γ, xn) avec les sections efficaces de CNDC présentent également des écarts. Ces derniers sont très importants à basse énergie (plus d'un facteur trois à 10 MeV) et diminuent lorsque l'énergie des électrons augmente. Afin de déterminer les causes de ces désaccords, nous avons extrait les sections efficaces photonucléaires utilisées pour chacun des isotopes du tungstène (^{180}W , ^{182}W , ^{183}W , ^{184}W , ^{186}W), et nous nous sommes également intéressés aux sections efficaces du tantale (^{181}Ta). Par souci de rigueur, les sections efficaces ont été extraites de deux manières différentes, par calcul et avec la fonction dédiée de MCNPX. Les deux méthodes d'extraction ont donné des sections efficaces identiques. Les figures 2.6 à 2.11 présentent respectivement les sections efficaces photonucléaires du ^{180}W et ^{183}W , du ^{182}W , ^{184}W , ^{186}W , et du ^{181}Ta . Les sections efficaces (γ, n) et $(\gamma, 2n)$ extraites sont celles de CNDC. En l'absence de spécification dans la légende, les sections efficaces (γ, xn) proviennent indifféremment de CNDC ou d'ENDF/B-VII (générées par le module ACE du code NJOY à partir des sections efficaces (γ, n) et $(\gamma, 2n)$) sauf pour le ^{184}W pour lequel les sections efficaces (γ, xn) de CNDC et d'ENDF/B-VII sont

tracées séparément car ces dernières sont différentes. Pour le ^{182}W , ^{184}W , ^{186}W , et ^{181}Ta , nous avons également tracé les sections efficaces mesurées par A.M. Goryachev et G.N. Zalesnyy [Goryachev78] ou Bergère *et al.* [Bergère68] (barres d'erreurs omises par souci de clarté). En revanche, il est bon de souligner qu'aucun résultat de mesure de sections efficaces photonucléaires n'a été publié pour le ^{180}W et le ^{183}W dans la gamme d'énergie qui nous intéresse. Les sections efficaces photonucléaires du ^{180}W et du ^{183}W ont été déterminées à partir de modèles [AIEA00].

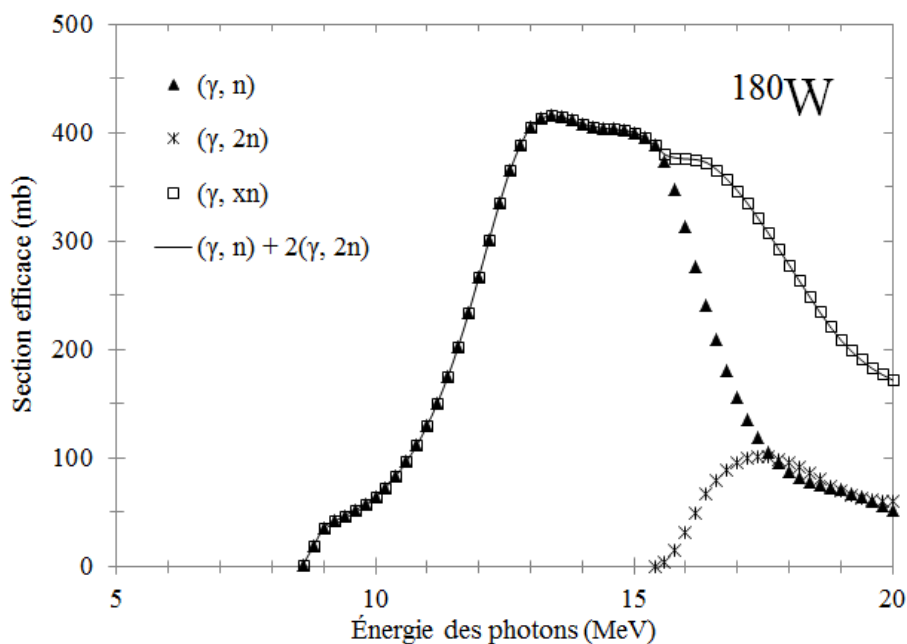


Figure 2.6 : Sections efficaces photonucléaires du ^{180}W .

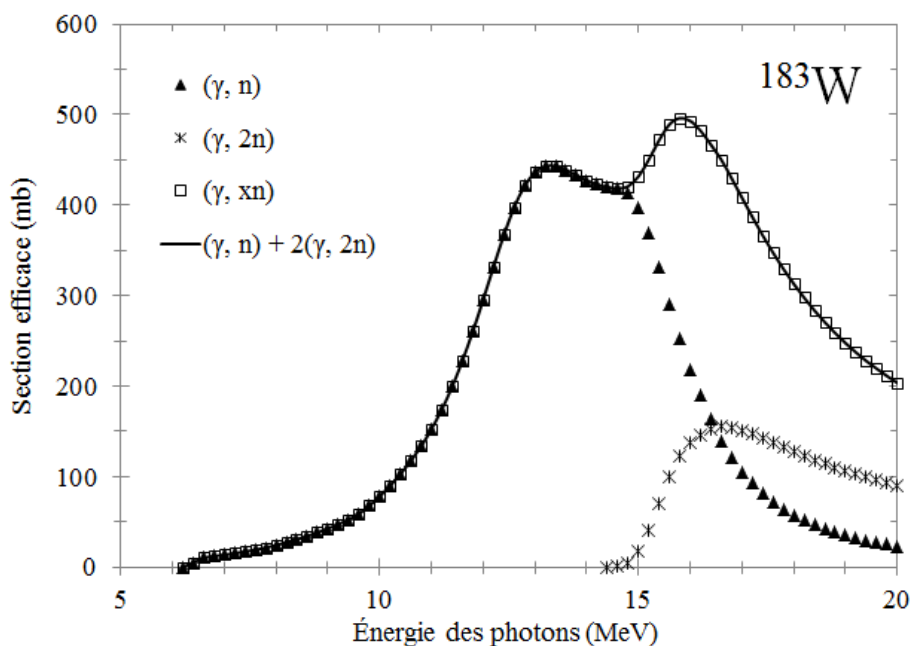


Figure 2.7 : Sections efficaces photonucléaires du ^{183}W .

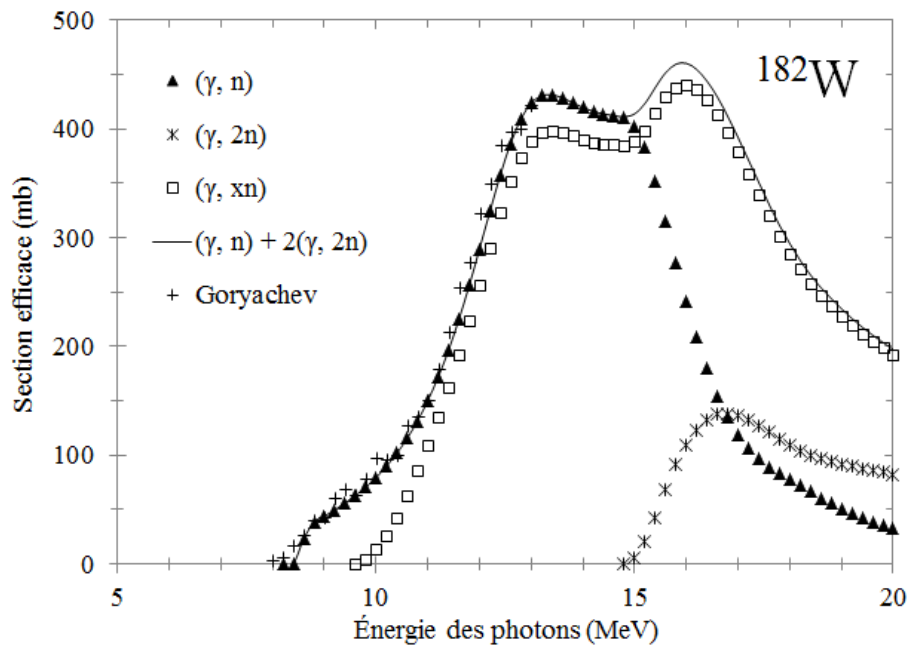


Figure 2.8 : Sections efficaces photonucléaires du ^{182}W .

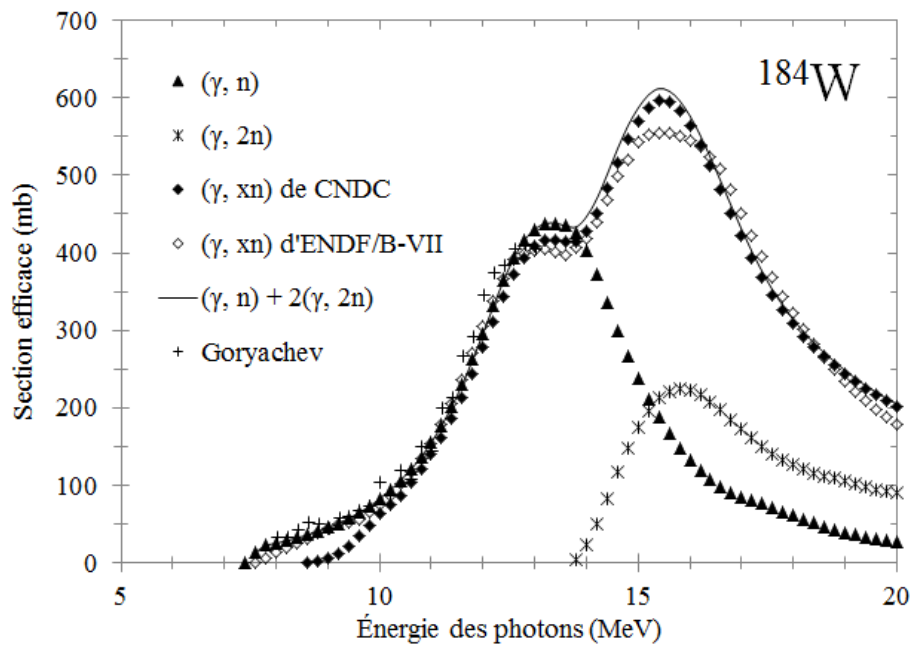


Figure 2.9 : Sections efficaces photonucléaires du ^{184}W .

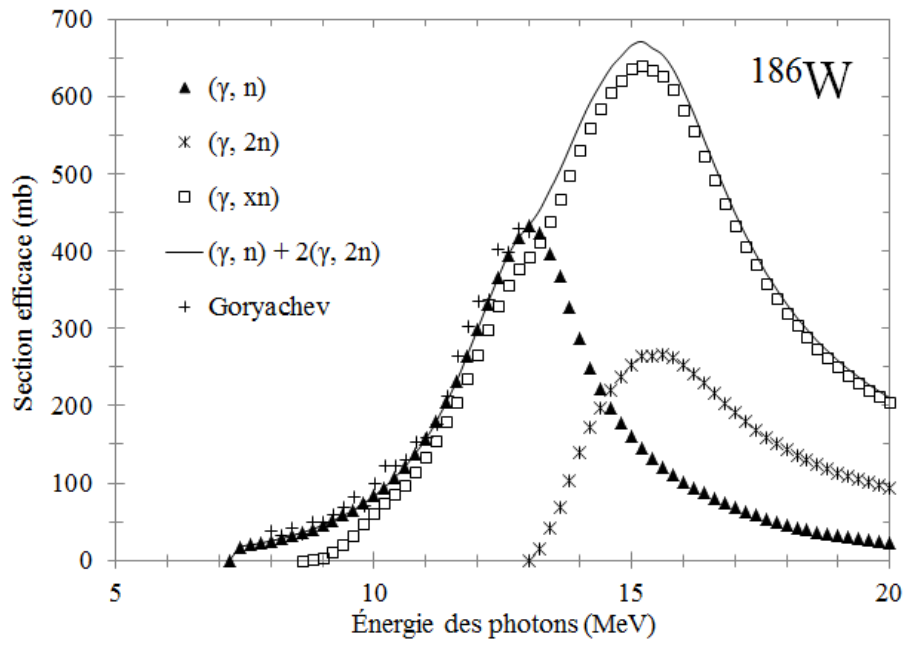


Figure 2.10 : Sections efficaces photonucléaires du ^{186}W .

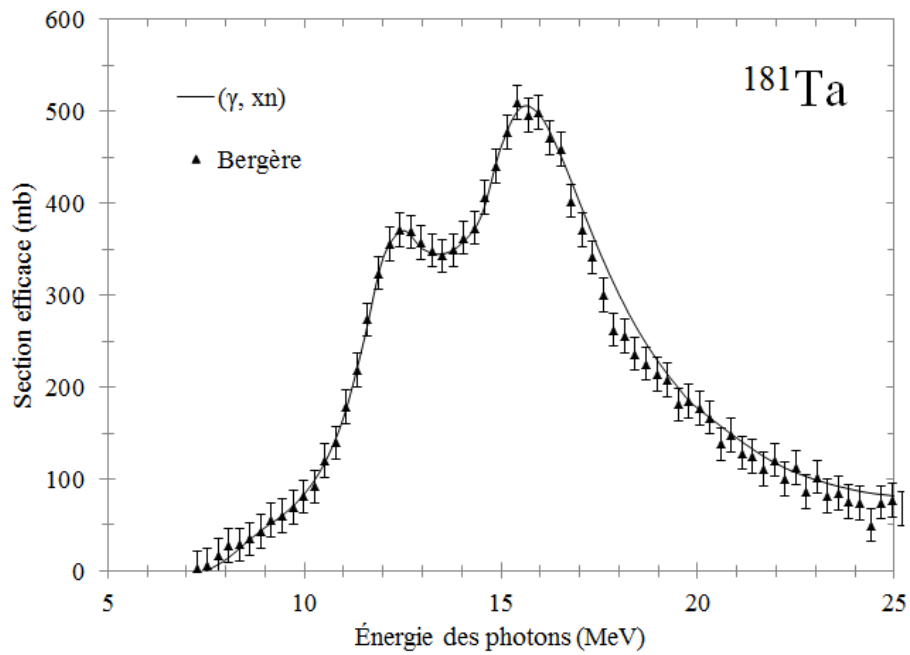


Figure 2.11 : Sections efficaces photonucléaires du ^{181}Ta .

Pour le ^{180}W et ^{183}W , les sections efficaces (γ, n) et (γ, xn) sont en bon accord en deçà du seuil de réaction $(\gamma, 2n)$. Les sections efficaces (γ, xn) et $(\gamma, n) + 2(\gamma, 2n)$ sont également en accord. En revanche, pour le ^{182}W , ^{184}W et ^{186}W , des désaccords importants apparaissent et notamment au niveau du seuil de réaction (γ, n) . De plus, pour ces trois isotopes, les sections efficaces (γ, n) sont en bon accord avec les données expérimentales, ce qui montre que les sections efficaces (γ, xn) présentent des erreurs. Remarquons que les sections efficaces (γ, xn) sont en accord avec les mesures pour le ^{181}Ta . Dans le cadre de ce travail de thèse, nous avons identifié l'origine des écarts mis en évidence à l'occasion de nos calculs d'intensités moyennes d'émission. Les sections efficaces (γ, xn) générées à partir des sections efficaces (γ, n) et $(\gamma, 2n)$ de CNDC et d'ENDF/B-VII par le module ACE du code NJOY présentent des erreurs à basse énergie. Il est à noter que nous avons montré par simulation que MCNPX génère par défaut les photoneutrons à partir des sections efficaces (γ, xn) . Compte tenu du fait que les sections efficaces (γ, xn) pour le ^{184}W issues d'ENDF/B-VII présentent des erreurs moins importantes que celles de CNDC, il est préférable de réaliser les simulations MCNPX mettant en jeu des photoneutrons avec les sections efficaces d'ENDF/B-VII afin de minimiser l'impact des erreurs de sections efficaces à basse énergie. Cependant, dans le cas où l'on réalise un calcul de taux de réaction ou de production dans la cible afin de déterminer la production photoneutronique, nous recommandons de réaliser manuellement un calcul de taux de production $((\gamma, n) + 2(\gamma, 2n))$ avec les sections efficaces (γ, n) et $(\gamma, 2n)$ de CNDC, afin de s'affranchir des erreurs de sections efficaces à basse énergie. Parmi les différentes valeurs d'intensités moyennes d'émission des photoneutrons émis par une cible de tungstène présentées précédemment, nous retenons ainsi celles calculées à partir d'un taux de production $(\gamma, n) + 2(\gamma, 2n)$ avec les sections efficaces de CNDC (tableau 2.2). Nous pouvons souligner que ces intensités atteignent des valeurs de quelques 10^{11} neutrons par seconde dans 4π stéradians, qui sont de l'ordre de deux décades supérieures par rapport à celles délivrées par le générateur de neutrons utilisé dans l'industrie nucléaire, à savoir le générateur deutérium-tritium GENIE 36 (intensité moyenne d'émission de $2 \cdot 10^9$ n/s) [Sodern].

Nous avons exposé les problèmes découverts au cours de ce travail de thèse au niveau des sections efficaces photonucléaires (γ, xn) à différentes personnes de l'équipe de développement du code de calcul MCNPX du *Los Alamos National Laboratory* (dont Dr. J.S. Hendricks). Cependant, c'est à la suite d'un échange avec différents membres de l'équipe de développement du code de calcul TRIPOLI-4 du CEA que les problèmes rencontrés ont été clairement identifiés (erreurs de *yield* contenues dans les données photonucléaires). Soulignons à cette occasion que l'échange mis en place au cours de cette thèse avec l'équipe de développement du code de calcul TRIPOLI-4 a également permis de détecter et de corriger un bug et diverses erreurs numériques contenues dans les données photonucléaires. L'ensemble de ces corrections sont prises en compte dans la version 4.9.0 du code. Soulignons également que l'équipe de développement de TRIPOLI-4 a créé une nouvelle réponse (taux de production photoneutronique) dans le cadre de cet échange afin de permettre la comparaison directe entre nos calculs de taux de production (γ, xn) réalisés avec MCNPX et les calculs réalisés avec TRIPOLI-4.

Nous avons comparé les résultats des calculs d'intensités moyennes d'émission photoneutronique obtenus avec MCNPX et TRIPOLI-4. Ces calculs ont été réalisés pour le cas de la cible de tantale et pour celui de la cible de tungstène. Les calculs MCNPX ont été réalisés à partir d'un taux de production $(\gamma, n) + 2(\gamma, 2n)$ avec les sections efficaces de CNDC pour le cas de la cible de tungstène, et à partir d'un taux de production (γ, xn) avec les sections efficaces d'ENDF/B-VII pour le cas de la cible de tantale. Chaque calcul TRIPOLI-4, a été réalisé de plusieurs manières différentes. Nous avons procédé à des calculs de « courant » (équivalent à la tally F1 dans MCNPX), à des calculs de « taux de production photoneutronique » (équivalent au taux de production (γ, xn) dans MCNPX), et à des calculs de réponse « *production neutron from photon* ». Ces trois calculs ont abouti à des résultats identiques. La comparaison des résultats obtenus avec MCNPX et TRIPOLI-4 pour la cible de tungstène sont présentés dans le tableau 2.3, ceux obtenus pour la cible de tantale sont rassemblés dans le tableau 2.4. Les incertitudes statistiques à un sigma associées aux résultats de ces calculs sont inférieures à 0,2%.

Énergie des électrons (MeV)	TRIPOLI-4	MCNPX	$\frac{\text{TRIPOLI-4}}{\text{MCNPX}}$
10	$1,11 \cdot 10^9$ n/s	$1,35 \cdot 10^9$ n/s	0,82
11	$2,76 \cdot 10^9$ n/s	$3,26 \cdot 10^9$ n/s	0,85
12	$5,91 \cdot 10^9$ n/s	$6,81 \cdot 10^9$ n/s	0,87
13	$1,14 \cdot 10^{10}$ n/s	$1,29 \cdot 10^{10}$ n/s	0,88
14	$2,00 \cdot 10^{10}$ n/s	$2,23 \cdot 10^{10}$ n/s	0,90
15	$3,17 \cdot 10^{10}$ n/s	$3,54 \cdot 10^{10}$ n/s	0,90
16	$4,69 \cdot 10^{10}$ n/s	$5,23 \cdot 10^{10}$ n/s	0,90
17	$6,48 \cdot 10^{10}$ n/s	$7,23 \cdot 10^{10}$ n/s	0,90
18	$8,52 \cdot 10^{10}$ n/s	$9,48 \cdot 10^{10}$ n/s	0,90
19	$1,07 \cdot 10^{11}$ n/s	$1,19 \cdot 10^{11}$ n/s	0,90
20	$1,30 \cdot 10^{11}$ n/s	$1,45 \cdot 10^{11}$ n/s	0,90

Tableau 2.3 : Intensités moyennes du flux de photoneutrons émis par une cible de tungstène en fonction de l'énergie des électrons. Comparaison des résultats obtenus avec MCNPX et TRIPOLI-4.

Énergie des électrons (MeV)	TRIPOLI-4	MCNPX	$\frac{\text{TRIPOLI-4}}{\text{MCNPX}}$
10	$7,14 \cdot 10^8$ n/s	$8,10 \cdot 10^8$ n/s	0,88
11	$2,10 \cdot 10^9$ n/s	$2,32 \cdot 10^9$ n/s	0,90
12	$4,89 \cdot 10^9$ n/s	$5,38 \cdot 10^9$ n/s	0,91
13	$9,94 \cdot 10^9$ n/s	$1,08 \cdot 10^{10}$ n/s	0,92
14	$1,75 \cdot 10^{10}$ n/s	$1,89 \cdot 10^{10}$ n/s	0,93
15	$2,73 \cdot 10^{10}$ n/s	$2,97 \cdot 10^{10}$ n/s	0,92
16	$3,98 \cdot 10^{10}$ n/s	$4,35 \cdot 10^{10}$ n/s	0,92
17	$5,47 \cdot 10^{10}$ n/s	$5,98 \cdot 10^{10}$ n/s	0,92
18	$7,15 \cdot 10^{10}$ n/s	$7,80 \cdot 10^{10}$ n/s	0,92
19	$9,00 \cdot 10^{10}$ n/s	$9,80 \cdot 10^{10}$ n/s	0,92
20	$1,09 \cdot 10^{11}$ n/s	$1,19 \cdot 10^{11}$ n/s	0,92

Tableau 2.4 : Intensités moyennes du flux de photoneutrons émis par une cible de tantale en fonction de l'énergie des électrons. Comparaison des résultats obtenus avec MCNPX et TRIPOLI-4.

De manière générale, les intensités moyennes d'émission photoneutronique calculées avec MCNPX sont plus élevées que celles déterminées avec TRIPOLI-4. Les écarts entre les résultats obtenus avec MCNPX et TRIPOLI-4 concernant les intensités moyennes d'émission photoneutronique délivrées par une cible de tungstène, irradiée par des électrons possédant une énergie comprise entre 10 MeV et 13 MeV, sont compris entre 12% et 18%. Pour une énergie d'électrons comprise entre 14 MeV et 20 MeV, l'écart se stabilise à la valeur de 10%. Dans le cas de la cible de tantale, les écarts sont compris entre 7% et 12% sur l'ensemble de la gamme d'énergie d'électrons étudiée. Une information importante est à considérer dans l'analyse de ces résultats. Tout d'abord, à la différence de TRIPOLI-4, MCNPX dispose de sections efficaces (γ, xn) pour le ^{184}W et le ^{181}Ta avec ENDFB/VII alors que ces dernières ne sont pas présentes dans l'évaluation brute d'ENDFB/VII. Pour ces deux isotopes, TRIPOLI-4 dispose des sections efficaces présentes dans l'évaluation ENDFB/VII — à savoir les sections efficaces (γ, total) — et ne tient donc pas compte de la pondération d'un facteur deux des réactions ($\gamma, 2n$) à la production photoneutronique. Cette différence entre MCNPX et TRIPOLI-4 n'a d'effet qu'au-delà du seuil de réaction ($\gamma, 2n$) (situé à 13,6 MeV pour le ^{184}W et à 14,22 MeV pour le ^{181}Ta [AIEA00]). Cette différence entre MCNPX et TRIPOLI-4 n'explique donc pas à elle seule les écarts mis en évidence entre les intensités d'émission

moyenne. Il est très probable que ces écarts soient dus à des différences de traitement des données photonucléaires entre les deux codes. Ces écarts justifieraient des investigations supplémentaires afin d'être pleinement interprétés. Notons malgré tout que certains détails dans l'interprétation des données photonucléaires par le code de calcul MCNPX restent difficilement accessibles. Finalement, bien que certains écarts entre les résultats de calculs d'intensité moyenne d'émission obtenus avec MCNPX et TRIPOLI-4 ne puissent être expliqués, ces écarts restent faibles et la réalisation de ces calculs avec les deux codes a permis de renforcer notre compréhension des résultats de simulation des intensités moyennes d'émission photoneutronique délivrées par un accélérateur d'électrons.

2. Optimisation du flux de photoneutrons par simulation

L'optimisation du flux de photoneutrons consiste à la fois à augmenter son intensité d'émission moyenne et à diminuer le nombre de photons de haute énergie contenus dans celui-ci. Un flux de photoneutrons optimisé permettrait ainsi de repousser les masses limites de détection en interrogation neutronique active et de minimiser les réactions parasites de photofission durant la mesure. Une géométrie de cible adéquate permettrait d'atteindre cet objectif. C'est sur l'épaisseur de la cible que nous avons focalisé cette étude d'optimisation. Nos calculs ont été réalisés pour une énergie d'électrons fixée à 17 MeV (énergie de référence pour nos mesures).

2.1 Production de photoneutrons

Nous avons réalisé de nouveaux calculs d'intensité moyenne d'émission photoneutronique en nous intéressant au cas d'une cible cylindrique de tungstène ou de tantale présentant une épaisseur comprise entre 5 mm et 5 cm. La figure 2.12 expose les résultats obtenus (incertitudes statistiques à un sigma inférieures à 0,2%). Les écarts entre les résultats obtenus avec MCNPX ou TRIPOLI-4 restent les mêmes que ceux discutés précédemment. Cependant, remarquons que les deux codes présentent une évolution similaire entre l'intensité moyenne d'émission photoneutronique et l'épaisseur de la cible. Pour un matériau de cible donné, nous pouvons voir que l'intensité peut être considérée comme maximale pour une cible épaisse de 3 cm. Une cible de tungstène ou de tantale de 3 cm d'épaisseur irradiée par des électrons de 17 MeV permet d'obtenir une intensité moyenne d'émission de l'ordre de 10^{11} n/s.

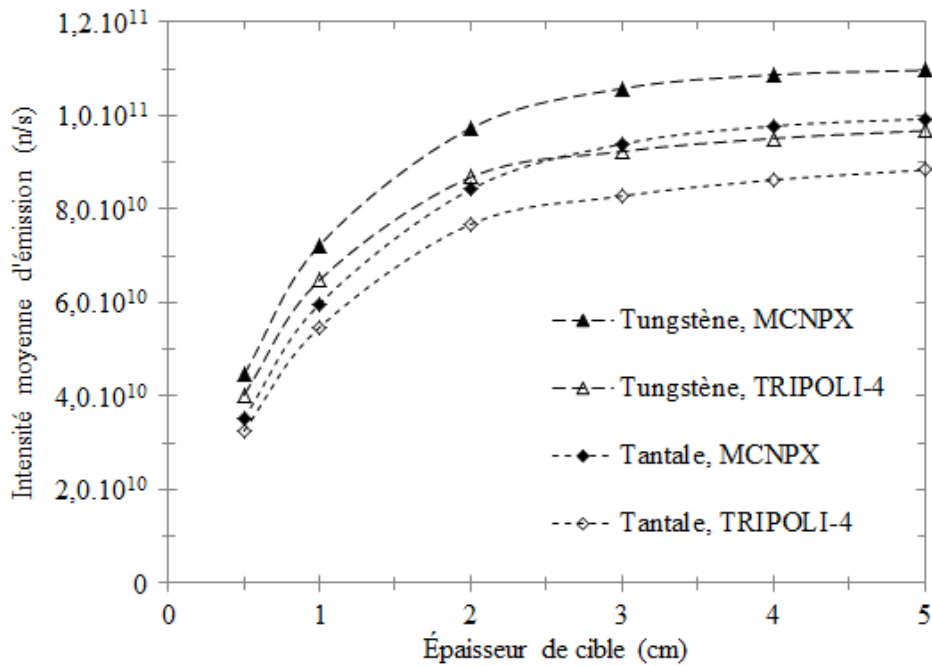


Figure 2.12 : Évolution de l'intensité moyenne d'émission photoneutronique en fonction de l'épaisseur de la cible de tungstène ou de tantale irradiée par des électrons de 17 MeV.

Nous avons montré précédemment que les réactions photonucléaires à l'origine de la création des photoneutrons se produisent essentiellement en entrée de cible. Nous nous sommes ainsi proposés de quantifier l'impact de cet effet sur la distribution angulaire des photoneutrons générés par une cible épaisse. Nous avons simulé la distribution angulaire des photoneutrons émis par une cible de tantale dont l'épaisseur est comprise entre 5 mm et 5 cm. Ces calculs ont été réalisés avec MCNPX. La figure 2.13 montre les résultats obtenus. Les distributions angulaires des cibles épaisses de 5 mm ou 1 cm présentent la même anisotropie à 90° que celle discutée précédemment lors de l'étude de caractérisation du flux de photoneutrons. Cependant, la distribution angulaire des photoneutrons émis par la cible de 3 cm d'épaisseur montre une anisotropie plus importante. Pour une telle épaisseur de cible, les effets de géométrie de la cible entraînent une dégradation de l'isotropie de la distribution angulaire pour les photoneutrons émis vers l'avant. Cette dégradation est encore plus importante pour une cible de 5 cm d'épaisseur.

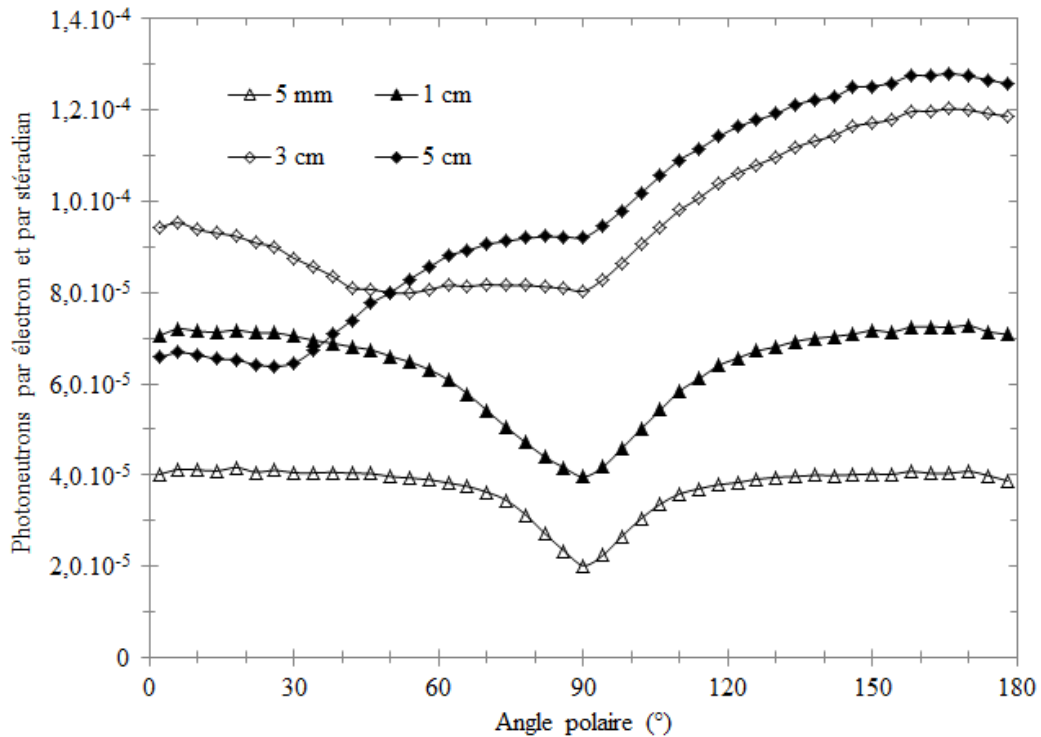


Figure 2.13 : Distribution angulaire des photoneutrons émis par une cible de tantale présentant une épaisseur comprise entre 5 mm et 5 cm. Résultats obtenus avec MCNPX pour une énergie d'électrons de 17 MeV.

2.2 Production de photons parasites

Nous avons calculé le nombre de photons parasites émis par électron incident dans 4π stéradians pour une cible de tungstène ou de tantale d'épaisseur comprise entre 5 mm et 5 cm. Rappelons que les photons parasites dans le cadre d'une mesure d'interrogation neutronique active sont ceux possédant une énergie supérieure à 6 MeV. Nous avons comparé les résultats obtenus avec les deux codes de calculs MCNPX (tally F1) et TRIPOLI-4 (calcul de courant). Ces résultats sont présentés sur la figure 2.14. Compte tenu de la différence de masse volumique entre le tungstène et le tantale, moins de photons de haute énergie s'échappent de la cible de tungstène que de celle de tantale à épaisseur de cible égale. Lorsque l'on considère un des deux matériaux de cible et une épaisseur de cible comprise entre 5 mm et 3 cm, les résultats obtenus avec MCNPX et TRIPOLI-4 présentent des écarts. Les résultats obtenus avec TRIPOLI-4 indiquent un nombre de photons parasites moins élevé que ceux obtenus avec MCNPX. Pour une épaisseur de cible supérieure ou égale à 3 cm, les résultats obtenus avec MCNPX et TRIPOLI-4 sont en bon accord. Cependant, les écarts mis en évidence entre les résultats obtenus avec les deux codes sont peu importants et montrent qu'une cible de 3 cm d'épaisseur émet plus de deux fois moins de photons parasites qu'une cible d'1 cm d'épaisseur.

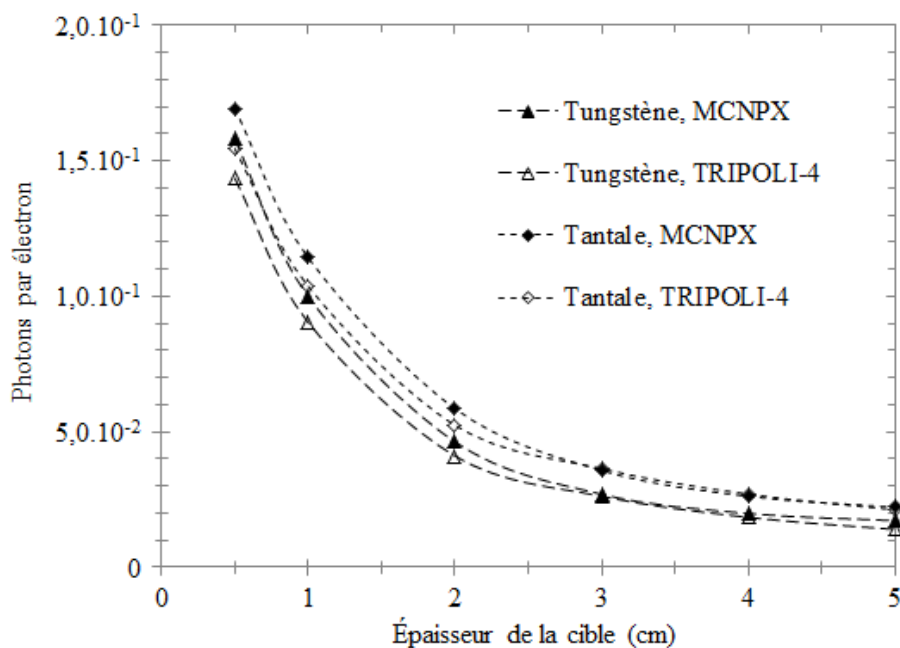


Figure 2.14 : Évolution du nombre de photons de plus de 6 MeV par électron incident en fonction de l'épaisseur de la cible de tungstène ou de tantalé irradiée par des électrons de 17 MeV.

Au vu des résultats obtenus en termes d'intensité moyenne d'émission photoneutronique et de distribution angulaire, une cible de 3 cm d'épaisseur constitue un bon compromis. Nous attirons cependant l'attention sur le fait qu'une telle cible présente une masse de près d'un kilogramme et que l'utilisation de celle-ci peut nécessiter une adaptation du porte-cible de l'accélérateur. En raison de ces contraintes, l'essentiel des mesures présentées dans la suite de ce mémoire seront effectuées avec des cibles d'1 cm d'épaisseur.

3. Évaluation expérimentale par activation neutronique

3.1 Motivations et méthode

Les publications portant sur les photoneutrons peuvent être regroupées en trois catégories : la radiothérapie [Ongaro00, Huang05], les applications liées au contrôle de matière et à la sécurité intérieure [Jones05, Lakosi11], et la caractérisation des colis de déchets radioactifs [Jallu00]. Les accélérateurs d'électrons constituent en effet d'intenses sources de neutrons pour la détection de matière nucléaire dans le cadre de la lutte contre la prolifération, ou encore, pour mesurer de faibles masses d'actinides contenues au sein de colis de déchets radioactifs [Jallu99, Lyoussi05b]. Cependant, c'est auprès de la communauté de la physique médicale que la problématique « photoneutrons » a connu l'engouement le plus important ces dernières années [Naseri10]. Les photoneutrons constituent en effet un risque potentiel de tumeurs secondaires pour les patients traités par radiothérapie [Vega-Carrillo12]. Après l'irradiation, le personnel hospitalier peut à son tour être exposé aux rayonnements gamma de désactivation émis suite à l'activation neutronique de différents matériaux par des photoneutrons. Bien que les objectifs des utilisateurs au sein de ces différents domaines soient

différents, il existe de nombreuses similitudes entre les accélérateurs d'électrons utilisés et les flux de photoneutrons générés. Dans le cadre de cette thèse, nous nous sommes ainsi attachés à développer une nouvelle méthode qui permette de caractériser le flux de photoneutrons émis par un accélérateur d'électrons quel que soit son domaine d'utilisation. Notre objectif était d'utiliser cette méthode afin d'étudier le flux de photoneutrons émis par l'accélérateur d'électrons avec lequel nous réalisons nos recherches et nos développements en interrogation neutronique active, et que cette méthode puisse être appliquée sur d'autres types d'accélérateurs d'électrons. Notre méthode a ainsi été déployée pour caractériser le flux de photoneutrons émis par deux accélérateurs appartenant tous deux au CEA LIST : l'accélérateur d'électrons de l'installation SAPHIR avec lequel nous réalisons nos recherches ; et un accélérateur d'électrons médical Saturne 43F conçu par *General Electric*. Ce dernier accélérateur est utilisé à des fins de recherche en radiothérapie et pour la calibration métrologique des chambres à ionisation des hôpitaux français.

Dans notre approche, le flux de photoneutrons a été caractérisé en fonction des trois principaux paramètres suivants : distribution spatiale, spectre en énergie, et intensité moyenne d'émission. La distribution spatiale a été mesurée à l'aide d'un détecteur à activation. Nous avons dimensionné ce dernier par simulation MCNPX et l'avons optimisé pour mesurer de tels flux de photoneutrons. Le détecteur à activation — contenant un matériau destiné à être activé — est d'abord irradié par des photoneutrons. Les photons gamma de désactivation émis par ce matériau sont ensuite détectés avec un détecteur germanium. Les spectres en énergie et les intensités moyennes d'émission ont été déterminés par simulation MCNPX, puis évalués par comparaison entre calculs et mesures absolues d'activation neutronique.

3.2 Dimensionnement d'un détecteur à activation

Les flux de photoneutrons rapides émis par des accélérateurs d'électrons peuvent être mesurés à l'aide de matériaux présentant une haute section efficace de capture neutronique entraînant la formation d'un noyau fils avec un temps de demi-vie adéquat [Stephens58]. Les neutrons sont d'abord thermalisés, puis activent le matériau. Un schéma de détecteur à activation est présenté sur la figure 2.15. Nous avons considéré des plaques constituées de différents matériaux (vanadium, argent, et aluminium). Diverses raisons nous ont amené à sélectionner ces matériaux pour nos mesures d'activation neutronique : des instruments de mesure du flux neutronique dans le cœur des réacteurs EPR reposent sur l'activation neutronique du vanadium (*Aeroball Measuring System*), l'activation neutronique d'argent est utilisée à des fins de recherche ou d'expertise dans le domaine de l'art (analyse de pièces médiévales par exemple), et l'activation d'aluminium peut être utilisée en biologie afin de réaliser des analyses de prélèvements (analyse d'échantillons d'os par exemple). Pour chaque matériau, le tableau 2.5 rassemble l'isotope stable d'intérêt, son abondance, l'isotope radioactif créé, la section efficace thermique de la réaction d'activation (réaction de capture radiative (n, γ)), le temps de demi-vie de l'isotope radioactif, et l'énergie du photon gamma de désactivation étudié.

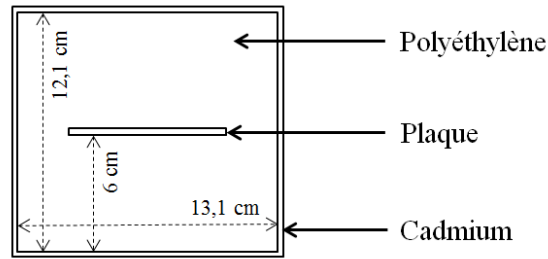


Figure 2.15 : Schéma d'un détecteur à activation neutronique.

	Vanadium	Argent	Aluminium
Isotope stable	^{51}V	^{107}Ag	^{27}Al
Abondance (%)	99,75	51,84	100,00
Isotope radioactif	^{52}V	^{108}Ag	^{28}Al
Section efficace thermique (n, γ) (b)	4,92	37,60	0,23
Temps de demi-vie (min)	3,74	2,37	2,24
Énergie du gamma (keV)	1434,06	632,98	1778,85
Probabilité d'émission	100,00%	1,76% ¹	99,98%

Tableau 2.5 : Principales caractéristiques de l'isotope radioactif d'intérêt produit suite à l'activation neutronique des plaques de vanadium, d'argent, et d'aluminium [Audi03, ENDF/B-VII.1].

Nous avons simulé le taux de réaction (n, γ) dans la plaque pour différentes épaisseurs de thermalisant entre la face avant du détecteur à activation (côté faisant face à la source de neutrons) et la plaque (en conservant une épaisseur de thermalisant identique sur la face avant et la face arrière). Nous avons considéré deux types de thermalisant pour cette étude : le polyéthylène et l'eau ; et avons considéré une source de neutrons rapides représentative de celle de l'accélérateur de l'installation SAPHIR. Cependant, pour des raisons pratiques, nous avons privilégié le polyéthylène à l'eau pour réaliser notre détecteur à activation. La figure 2.16 présente les résultats obtenus pour une plaque de vanadium (incertitudes

¹ La faible probabilité d'émission du photon gamma émis à 633 keV, suite à la désactivation de l' ^{108}Ag , est compensée par une importante section efficace de réaction (n, γ) sur l' ^{107}Ag .

statistiques à un sigma inférieures à 1%). Une épaisseur de 6 cm de polyéthylène, entre la face avant du détecteur à activation et la plaque de matériau, paraît appropriée au vu de ces résultats. Nous pouvons ajouter que cette épaisseur atteint 8 cm lorsque l'eau est utilisée en tant que thermalisant à la place du polyéthylène. Pour le polyéthylène comme pour l'eau, les simulations réalisées pour une plaque d'aluminium ou d'argent ont confirmé ces conclusions.

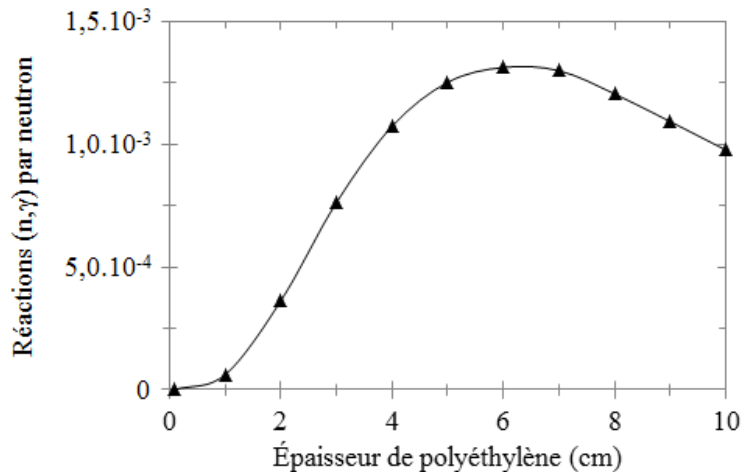


Figure 2.16 : Taux de réaction (n, γ) dans la plaque du détecteur à activation en fonction de l'épaisseur de polyéthylène sur les faces avant et arrière.

Nous avons évalué l'intérêt d'enrober le détecteur à activation avec une couche de 1 mm cadmium. Nous avons montré que l'impact du cadmium sur la part thermique du flux de neutrons délivré par la source est négligeable, comme attendu. Nous avons également étudié l'impact des neutrons thermalisés par les murs du hall d'irradiation. À cette occasion, un plan de la salle d'irradiation de l'installation SAPHIR a été établi afin de réaliser ces simulations. La figure 2.17 montre une représentation MCNPX du hall d'irradiation de cette installation. Les murs, le plafond et le sol sont constitués de béton baryté. La présence de fer dans celui-ci lui confère une masse volumique voisine de 5 g/cm³. À titre de comparaison, celle du béton ordinaire est d'environ 2,32 g/cm³. Nous avons montré que les neutrons diffusés par les murs — ayant une énergie supérieure à l'énergie de coupure du cadmium — n'ont pas d'impact significatif sur le taux de réaction (n, γ) dans la plaque du détecteur à activation. De manière générale, le cadmium permet de restreindre l'activation de la plaque du détecteur à activation aux neutrons thermalisés au sein de ce dernier et de mesurer ainsi les neutrons provenant directement de la cible de conversion. De plus, la présence du cadmium permet de s'affranchir de la modélisation du hall d'irradiation (diminution des temps de calculs).

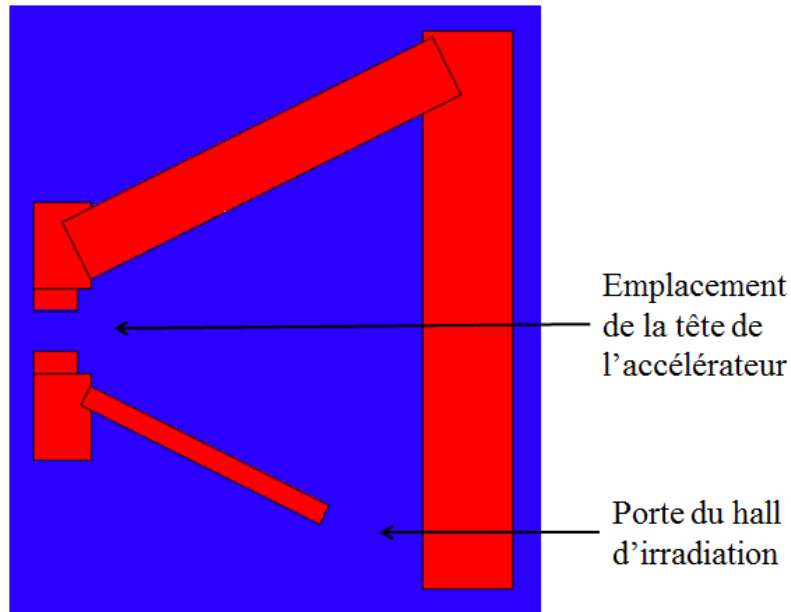


Figure 2.17 : Schéma MCNPX du hall d'irradiation de l'installation SAPHIR.

Le détecteur à activation construit suite à l'étude de conception par simulation est visible sur la figure 2.18. Il mesure 12,1 cm de long (6 cm de polyéthylène entre la face avant ou arrière et la plaque), 13,1 cm de large et 14,1 cm de haut. Ces dimensions sont indiquées sur la figure 2.15. L'épaisseur du cadmium est de 0,7 mm. Nous avons vérifié que les conclusions tirées suite à notre étude par simulation, basée sur une épaisseur de cadmium d'un millimètre, restaient inchangées pour une épaisseur de 0,7 mm. Les plaques destinées à être activées couvrent une surface de $10 \times 10 \text{ cm}^2$ et leur épaisseur est d'un millimètre. Celles-ci ont été obtenues auprès de la société *Goodfellow* (pureté supérieure ou égale à 99,9% en fonction des matériaux). Notons enfin que la face avant du détecteur à activation est amovible afin de permettre l'insertion ou le retrait de la plaque.

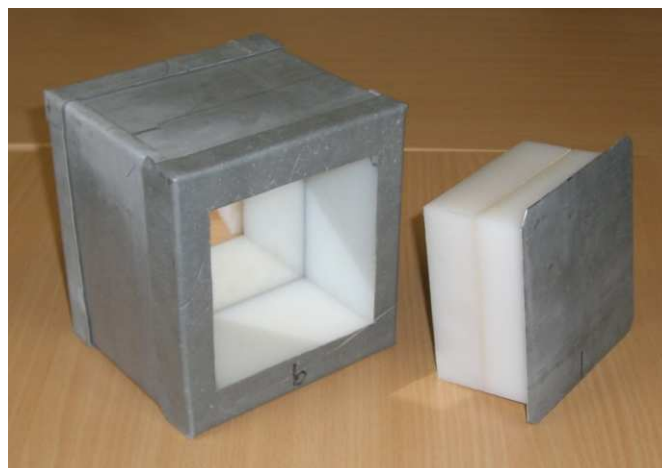


Figure 2.18 : Le détecteur à activation neutronique fabriqué suite à l'étude de conception par simulation, contenant une plaque d'argent et en position ouverte (face avant retirée).

3.3 Caractérisation du flux de photoneutrons émis par l'accélérateur de l'installation SAPHIR

L'accélérateur de l'installation SAPHIR, appartenant au CEA LIST, est situé sur le centre d'études nucléaires de Saclay. Cette installation dispose d'un accélérateur linéaire d'électrons qui est utilisé à des fins de recherche et développement sur les techniques de caractérisation des colis de déchets radioactifs [Carrel10b]. L'accélérateur est visible sur la figure 2.19. Dans le cadre de ces campagnes de mesure, les irradiations ont été réalisées pour deux énergies moyennes du spectre des électrons délivrés par l'accélérateur : 14 MeV et 17 MeV. L'intensité crête du courant d'électrons est de 100 mA, la durée de l'impulsion de 2,5 μ s, et la fréquence de répétition de 50 Hz. Deux cibles de conversion, également achetées auprès de la société *Goodfellow*, ont été utilisées au cours de cette étude : une cible de tungstène (pureté de 99,9%) et une cible de tantale (pureté de 99,95%). Ces deux cibles possèdent les mêmes dimensions : 1 cm d'épaisseur et 5 cm de diamètre.



Figure 2.19 : Accélérateur d'électrons de l'installation SAPHIR [Carrel10].

3.3.1 Distribution angulaire

La mesure de distribution spatiale du flux de photoneutrons réalisée auprès de l'accélérateur de l'installation SAPHIR est une mesure de type distribution angulaire. Un banc de mesure a été spécialement conçu dans le cadre de cette thèse afin de réaliser ces mesures. Nous avons d'abord positionné le détecteur à activation à une distance de 75 cm face à la cible (partie amovible du détecteur à activation orientée vers la cible), et ensuite déplacé ce dernier en différentes positions localisées le long d'un arc de cercle centré sur la cible et de 75 cm de rayon. La figure 2.20 illustre le principe de la mesure de distribution angulaire.

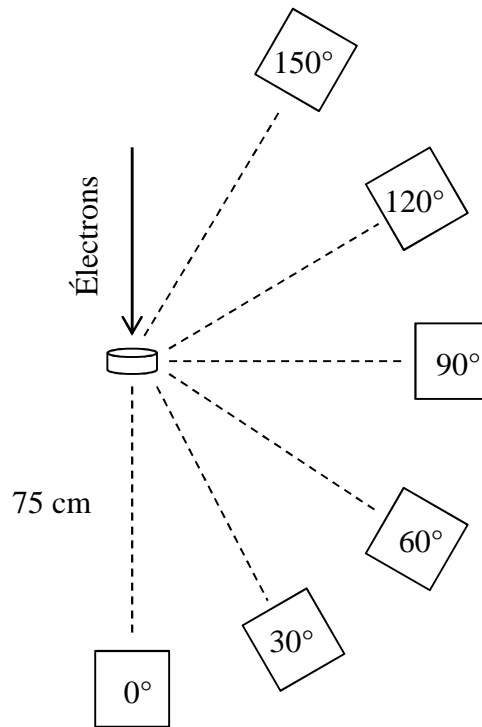


Figure 2.20 : Principe de la mesure de distribution angulaire.

Pour chaque position, le détecteur à activation a été irradié durant 10 min. Après 2 min de refroidissement, un spectre de gamma de désactivation a été obtenu à l'aide d'un détecteur germanium durant 10 min. Durant l'acquisition, le détecteur à activation était en position ouverte face au détecteur germanium, comme l'illustre la figure 2.21. La distance entre la face avant du détecteur à activation et le détecteur germanium était de 9 cm (15 cm entre la plaque activée et le détecteur germanium). Nous avons utilisé un détecteur HPGe de type p (GEM40P-PLUS, ORTEC) présentant une efficacité relative de 40%, relié à un spectromètre numérique DSPECPro (ORTEC). À titre d'exemple, un agrandissement de spectre obtenu pour le cas de la désactivation d'une plaque de vanadium est présenté sur la figure 2.21.

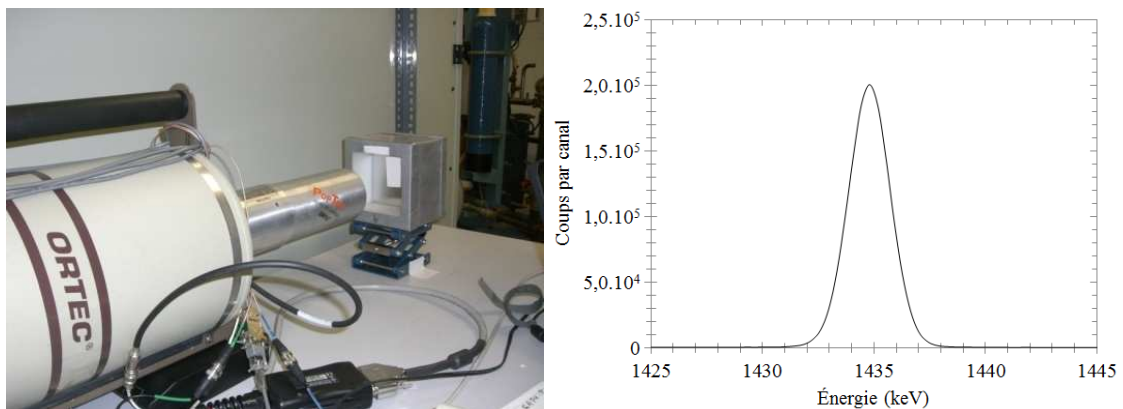


Figure 2.21 : Configuration expérimentale mise en place pour l'acquisition des spectres gamma de désactivation, et exemple de spectre obtenu pour le cas d'une plaque de vanadium (agrandissement de la région d'intérêt à 1434 keV).

L'annexe 1 précise comment évolue le signal mesuré (aires nettes des spectres de désactivation) avec le taux de réaction (n, γ) et donc en fonction du flux de neutrons. Dans un premier temps, nous allons nous intéresser à la distribution angulaire des photoneutrons et exploitons pour cela l'évolution des aires nettes en fonction de l'angle. Plusieurs campagnes de mesures de distribution angulaire des photoneutrons délivrées par l'accélérateur ont été réalisées. Les figures 2.22 à 2.24 présentent les derniers résultats obtenus. Pour l'ensemble de ces résultats, les distributions angulaires sont normalisées par rapport à la position 60°, et les barres d'erreurs ont été omises pour des raisons de clarté (incertitudes statistiques à un sigma comprises entre 0,2% et 4,5%). La figure 2.22 présente la distribution angulaire mesurée avec le détecteur à activation contenant la plaque de vanadium, d'argent, ou d'aluminium. La distribution apparaît isotrope entre les positions 60° et 150°. L'anisotropie observée vers l'avant (entre les positions 0° et 30°) est assez similaire pour les plaques de vanadium et d'aluminium. Remarquons cependant que cet effet est fortement marqué pour la mesure réalisée avec l'argent. Nous y reviendrons un peu plus loin avec la figure 2.28. Notons que le creux centré sur la position 90° est absent en raison du fait que le faisceau d'électrons n'était pas centré sur la cible durant les mesures. La figure 2.23 montre la distribution angulaire mesurée par activation de vanadium pour deux énergies moyennes du spectre d'électrons délivrés par l'accélérateur : 14 MeV et 17 MeV. L'allure de la distribution angulaire mesurée est similaire à ces deux énergies. Cependant, l'anisotropie observée vers l'avant est légèrement plus importante pour une énergie moyenne de 17 MeV que pour celle de 14 MeV. Nous avons ensuite comparé les résultats des distributions angulaires obtenues avec les cibles de tantale et de tungstène. Ces mesures ont été réalisées pour une énergie moyenne d'électrons de 17 MeV. Nous présentons ces résultats sur la figure 2.24. Les résultats obtenus avec les deux cibles présentent un très bon accord entre les positions 60° et 150°, bien que l'anisotropie observée soit plus importante dans le cas de la cible de tantale.

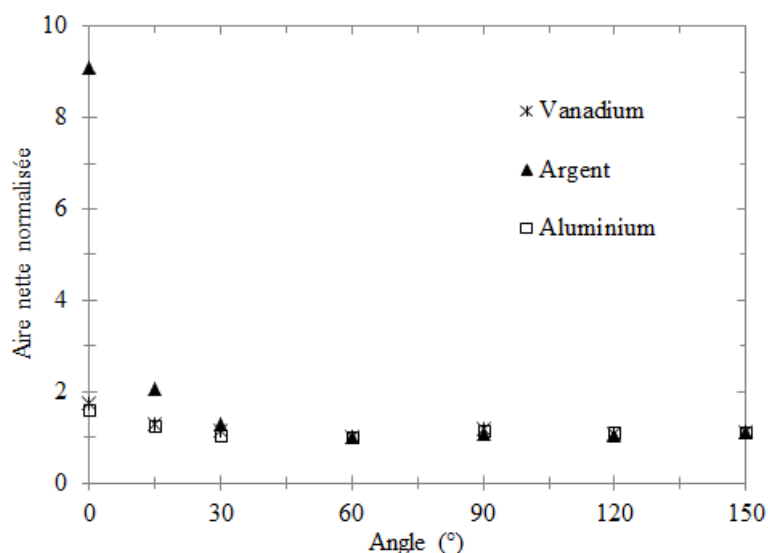


Figure 2.22 : Distribution angulaire du flux de photoneutrons émis par une cible de tantale irradiée par des électrons de 17 MeV, mesurée à l'aide du détecteur à activation contenant une plaque de vanadium, d'argent ou d'aluminium.

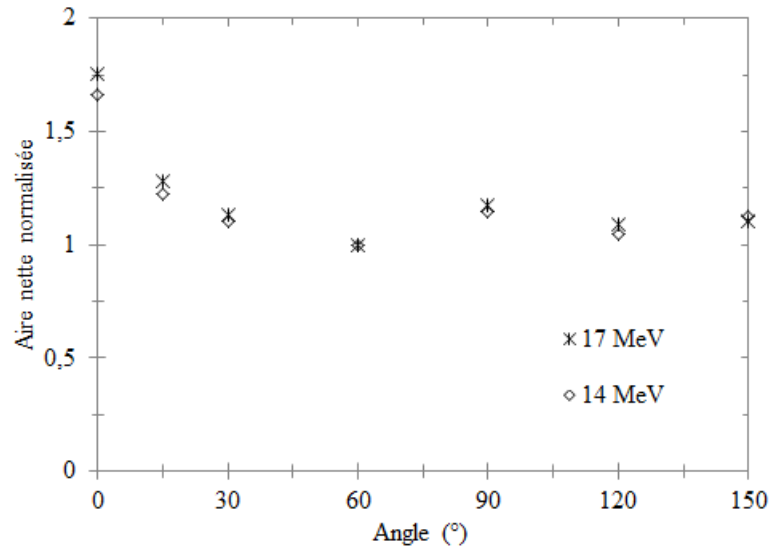


Figure 2.23 : Distribution angulaire du flux de photoneutrons émis par une cible de tantale irradiée par des électrons de 14 MeV ou 17 MeV, mesurée à l'aide du détecteur à activation contenant une plaque de vanadium.

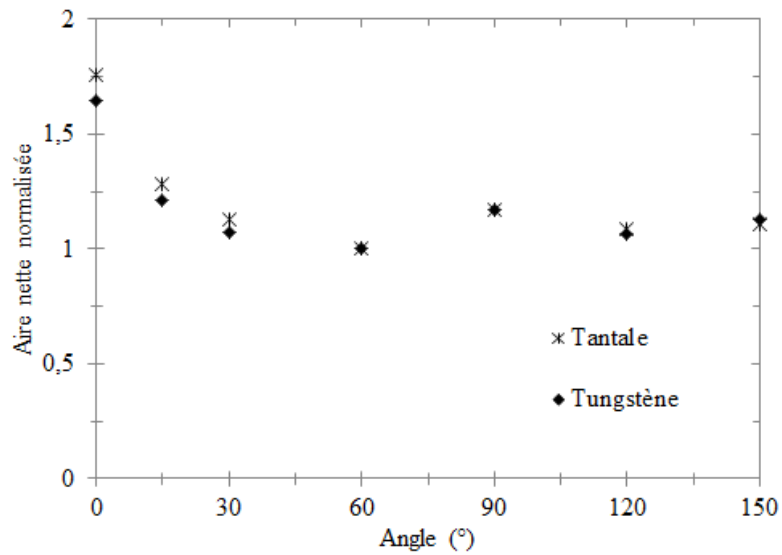


Figure 2.24 : Distribution angulaire du flux de photoneutrons émis par une cible de tantale ou une cible de tungstène irradiée par des électrons de 17 MeV, mesurée à l'aide du détecteur à activation contenant une plaque de vanadium.

Plusieurs hypothèses ont été émises afin de déterminer les causes de l'anisotropie mise en évidence dans la mesure de distribution angulaire. L'une des hypothèses envisagées concerne la production de neutrons par réaction électronucléaire dans la cible de conversion. En 1924, E. Fermi propose de traiter le champ électrique d'une particule chargée au voisinage d'un atome comme un champ électrique de lumière avec une distribution de fréquence appropriée [Fermi24]. Cette approximation, portant le nom d'approximation photon équivalente, sera reprise et développée par K.F. von Weizsacker, E.J. Williams, ou encore L.D. Landau et E.M. Lifshitz. L'électron incident à l'origine d'une réaction électronucléaire pouvant donc être traité comme un photon virtuel, il existe ainsi une grande étroitesse entre les réactions photonucléaires et les réactions électronucléaires. Cependant, peu de données expérimentales sur les réactions (e, n) existent. À notre connaissance, les seules données disponibles ont été publiées par M.I.C. Cataldi *et al.* pour le ^{181}Ta en 1988 [Cataldi88]. Ces dernières sont tracées sur la figure 2.25. Compte tenu du fait qu'aucune donnée sur la distribution angulaire des électroneutrons n'est présente dans la littérature, K. Kosako *et al.* ont émis l'hypothèse que la distribution angulaire des électroneutrons est semblable à celle des photons de *Bremsstrahlung* dont l'émission est fortement orientée vers l'avant [Kosako11]. Néanmoins, les sections efficaces de réactions électronucléaires étant faibles en comparaison avec celles des réactions photonucléaires, les auteurs d'études sur les photoneutrons présentent généralement la contribution des électroneutrons comme négligeable. Il est également important de mentionner que la physique électronucléaire n'est pas implémentée à ce jour dans MCNPX. La simulation de notre expérience de mesure de distribution angulaire permettant de retrouver l'anisotropie mise en évidence expérimentalement (résultats non présentés), la génération d'électroneutrons par la cible de conversion ne permet donc pas d'expliquer l'anisotropie de la distribution angulaire.

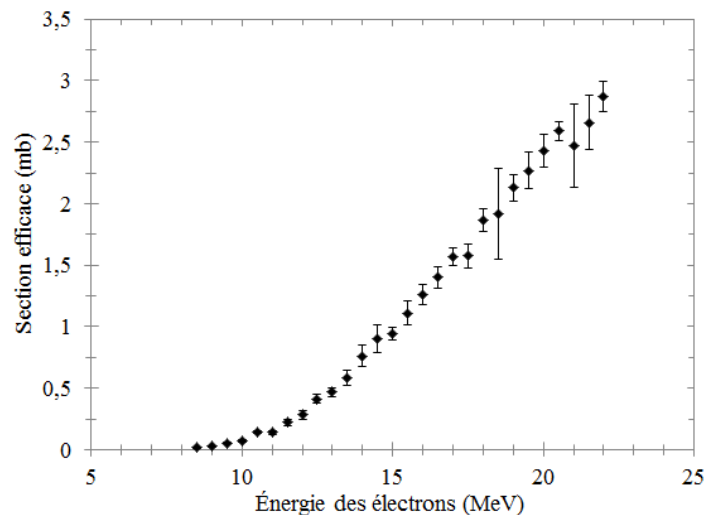


Figure 2.25 : Sections efficaces électronucléaires de réaction (e, n) pour le ^{181}Ta [Cataldi88].

La seconde hypothèse émise concerne un effet potentiel du porte-cible de notre accélérateur sur la distribution angulaire des photoneutrons émis par la cible de conversion. Nous avons donc d'abord réalisé un plan du porte-cible de l'accélérateur, puis l'avons

modélisé. Un schéma MCNPX du porte-cible est présenté sur la figure 2.26 (cas d'une cible de 5 mm d'épaisseur). Les principaux éléments et matériaux du porte-cible sont : le circuit d'eau de refroidissement qui assure le maintien de la température de la cible à un niveau acceptable, un matériau isolant qui permet la mesure du courant d'électrons sur la cible, une feuille d'aluminium qui assure le confinement du vide dans l'accélérateur, le reste étant majoritairement constitué d'acier inoxydable et de cuivre. Nous avons réalisé successivement la simulation de la mesure de distribution angulaire avec et sans le porte-cible. Les résultats de ces simulations ont permis d'infirmer l'hypothèse selon laquelle le porte-cible serait la cause de l'anisotropie de la distribution angulaire. Notons également que ces simulations ont permis de montrer que la modélisation du porte-cible n'est pas nécessaire dans le cadre de nos expériences. Celui-ci ne sera donc pas modélisé dans les simulations présentées dans la suite de cette étude afin de minimiser les temps de calcul.

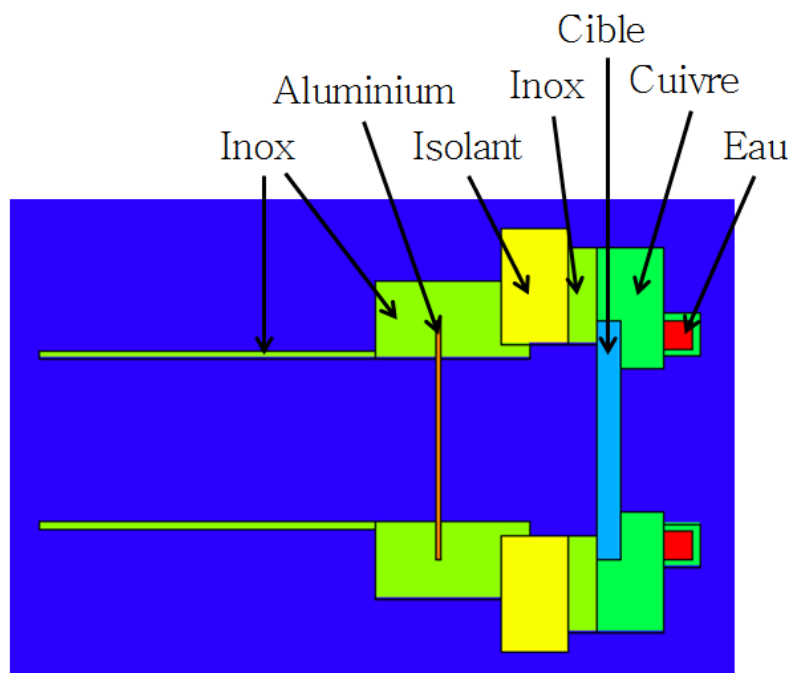


Figure 2.26 : Schéma MCNPX du porte-cible de l'accélérateur d'électrons de l'installation SAPHIR.

La mesure d'activation peut être perturbée par des réactions photonucléaires parasites ayant lieu au sein du détecteur à activation [Bourgois97, Kosako11]. La troisième hypothèse émise concerne ainsi la production de photoneutrons parasites au sein du détecteur à activation, lorsque ce dernier est exposé à un flux de photons de haute énergie. Ces photoneutrons parasites générés dans le détecteur pourraient à leur tour activer la plaque de matériau. Dans notre cas, ces réactions pourraient survenir dans l'enveloppe de cadmium et dans la plaque à activer (phénomènes d'auto-interrogation) lorsque le détecteur à activation est exposé à des photons de haute énergie. Les sections efficaces de production (γ, xn) sur le cadmium, l'argent, le vanadium et l'aluminium, sont représentées sur la figure 2.27. Nous pouvons notamment voir que les sections efficaces du cadmium sont les plus importantes. Ces

dernières atteignent plus de 200 mb pour une énergie de photons d'environ 15 MeV. À l'inverse, parmi ces différentes sections efficaces, celle de l'aluminium est la plus faible et présente le seuil de réaction le plus élevé. De plus, dans le cas où l'on réalise des mesures d'activation avec la plaque d'argent, une seconde voie de production de l'isotope radioactif mesuré (^{108}Ag) intervient en compétition avec la réaction d'intérêt $^{107}\text{Ag}(\gamma, n)^{108}\text{Ag}$ par la réaction suivante : $^{109}\text{Ag}(\gamma, n)^{108}\text{Ag}$. La section efficace de cette réaction est présentée sur la figure 2.28. Celle-ci dépasse les 150 mb pour une énergie de photons d'environ 16 MeV.

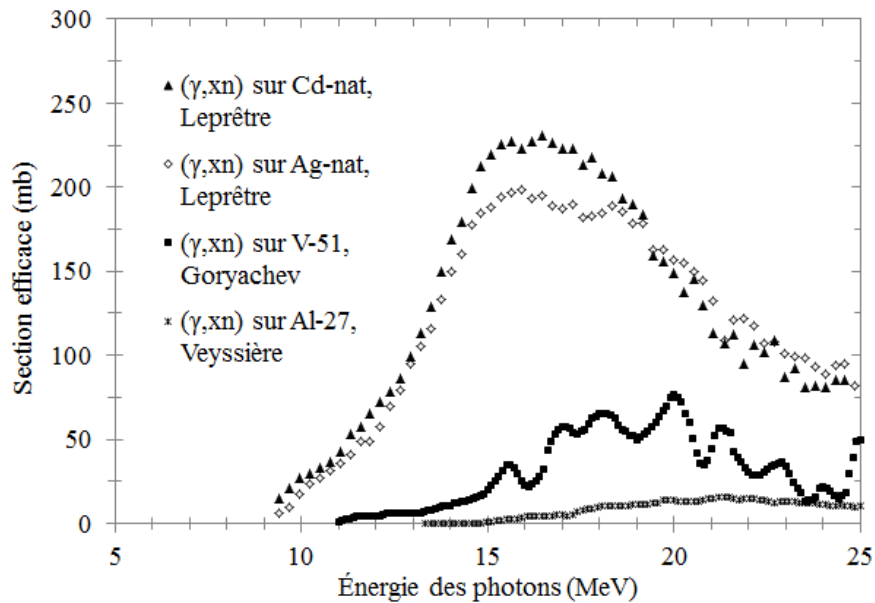


Figure 2.27 : Différentes sections efficaces (γ, xn) sur le cadmium naturel, l'argent naturel, le ^{51}V et ^{27}Al [Leprêtre74, Goryachev69, Veysière74].

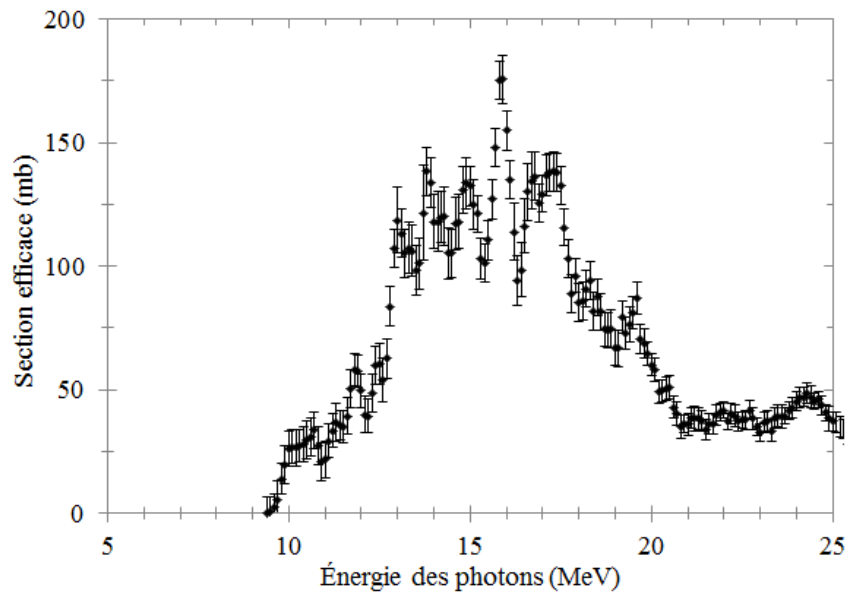


Figure 2.28 : Section efficace (γ, xn) sur ^{109}Ag mesurées par Ishkanov *et al.* en 1969 [Ishkanov69].

Afin d'évaluer cette troisième hypothèse, nous avons entrepris de simuler notre expérience de mesure de distribution angulaire en réalisant un calcul MCNPX de type *tally tagging* afin de localiser le site de création des photoneutrons entraînant l'activation de la plaque. Nous avons *taggé* (suivi) les photoneutrons générés dans la cible de conversion, dans le cadmium du détecteur à activation, et dans la plaque de matériau à activer. Le tableau 2.6 rassemble nos résultats obtenus pour le cas de la cible de tantale irradiée par des électrons présentant une énergie moyenne de 17 MeV, le détecteur à activation contenant une plaque de vanadium. Notons également que nous avons vérifié par simulation que la production de photoneutrons parasites générés dans le polyéthylène du détecteur (traces de ^{13}C et ^2H) et dans l'air du hall d'irradiation est négligeable.

	Cible	Cadmium	Plaque de vanadium
0°	42,7%	50,6%	6,7%
15°	68,2%	30,2%	1,6%
30°	87,7%	12,2%	0,1%
60°	98,0%	2,0%	0,0%
90°	97,9%	2,1%	0,0%
120°	98,7%	1,3%	0,0%
150°	99,4%	0,6%	0,0%

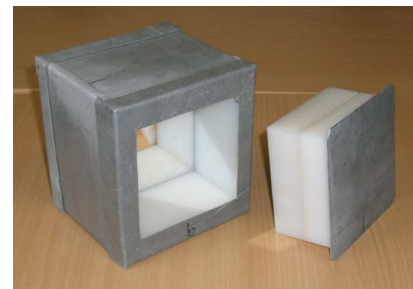
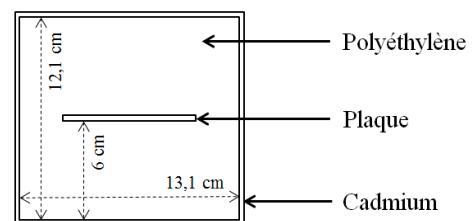


Tableau 2.6 : Site de création des photoneutrons activant le détecteur en chaque position de la mesure de distribution angulaire. Résultats de simulation MCNPX obtenus pour le détecteur contenant la plaque de vanadium.

Les réactions photonucléaires dans le cadmium et dans la plaque du détecteur à activation sont donc bien à l'origine d'une production importante de photoneutrons au sein du détecteur lorsque celui-ci est exposé à un flux de photons de haute énergie. Nous pouvons noter que la contribution parasite de la plaque de matériau est peu importante si on la compare à celle due au cadmium. Ainsi, lorsque le détecteur à activation est à la position 0°, la moitié du signal mesuré provient en réalité des photoneutrons générés dans le cadmium. La mesure effectuée avec le détecteur à activation n'est représentative des photoneutrons générés par l'accélérateur qu'aux positions excentrées (à partir de la position 30°). La désactivation des différents effets à l'origine de la production de photoneutrons parasites, lors de la simulation de notre mesure de distribution angulaire (résultats non présentés), entraîne la disparition de l'anisotropie.

En résumé, lorsque l'on considère une même cible et une même énergie moyenne d'électrons, l'anisotropie observée a un impact qui diffère en fonction de la nature de la plaque à activer compte tenu des différents seuils et allures des sections efficaces photonucléaires des matériaux constituant les plaques (figure 2.27). Cela explique les différences d'allure des distributions angulaires présentées précédemment sur la figure 2.22. Dans le cas de la plaque d'argent, la forte anisotropie est due à la formation de l'isotope radioactif mesuré (^{108}Ag) par la réaction (γ, n) sur ^{109}Ag . Par ailleurs, la production de photoneutrons parasites augmente dans le cadmium et dans la plaque de matériau à activer lorsque l'énergie des électrons augmente. Pour une même cible et une même plaque, l'anisotropie est donc plus importante dans le cas de la mesure réalisée pour une énergie moyenne d'électrons de 17 MeV que dans le cas de la mesure réalisée pour une énergie moyenne de 14 MeV, comme vérifié sur la figure 2.23. Pour une même énergie moyenne d'électrons et une même plaque de matériau à activer, nous pouvons aussi expliquer pourquoi l'anisotropie est plus forte dans le cas de la mesure réalisée avec la cible de tantale que dans le cas de la mesure réalisée avec la cible de tungstène (figure 2.24). Les réactions photonucléaires parasites, notamment (γ, xn) sur le cadmium, sont moins nombreuses dans le détecteur à activation lorsque l'on considère une cible de tungstène plutôt qu'une cible de tantale. Le nombre de photons de haute énergie s'échappant de la cible est en effet moins important pour la cible de tungstène que pour celle de tantale compte tenu de la différence de masse volumique entre ces deux matériaux. Finalement, nous pouvons conclure que les photoneutrons générés par l'accélérateur d'électrons de l'installation SAPHIR sont selon toute vraisemblance émis de manière isotrope, les anisotropies observées résultent d'effets liés à la géométrie de la cible ou à des réactions parasites dans le détecteur à activation.

3.3.2 Spectre en énergie et intensité moyenne d'émission

Nous avons simulé le spectre en énergie des photoneutrons en considérant la cible de tantale ou la cible de tungstène irradiée par des électrons dont l'énergie moyenne est égale à 14 MeV ou 17 MeV. Ces simulations ont été réalisées en tenant compte des spectres en énergie des électrons déterminés lors de nos campagnes de mesure sur l'installation SAPHIR. Les résultats obtenus pour la cible de tungstène sont présentés sur la figure 2.29. Ces derniers sont en accord avec nos résultats obtenus précédemment pour le cas d'électrons monoénergétiques. L'énergie moyenne des différents spectres photoneutroniques est d'environ 1 MeV pour la cible de tungstène comme pour celle de tantale. Cette valeur est en accord avec la littérature et nos résultats précédents.

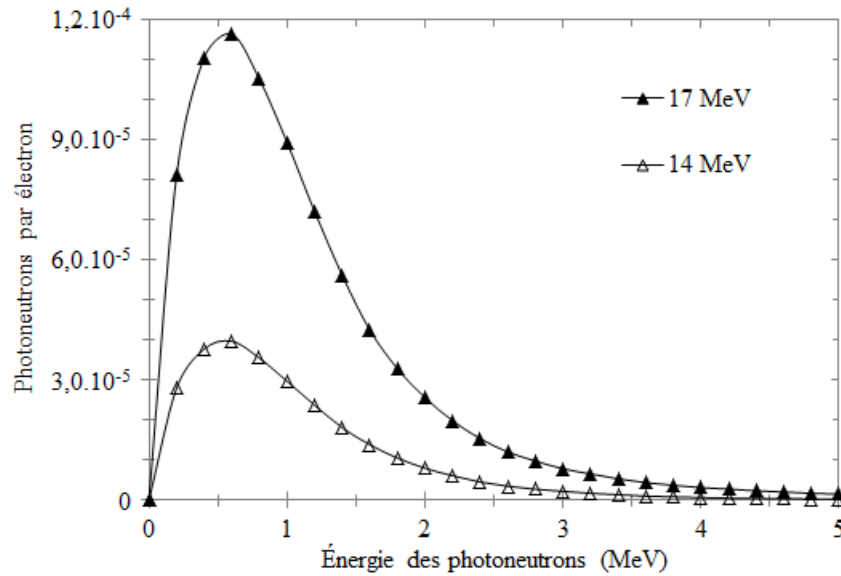


Figure 2.29 : Spectres en énergie des photoneutrons émis par une cible de tungstène irradiée par des électrons présentant une énergie moyenne de 14 MeV ou 17 MeV.

Pour la cible de tungstène, les intensités moyennes d'émission ont été calculées à partir d'un taux de production $(\gamma, n) + 2(\gamma, 2n)$ et en utilisant les sections efficaces photonucléaires issues de CNDC. Pour la cible de tantale, les intensités moyennes d'émission ont été calculées à partir d'un taux de production (γ, xn) en utilisant les sections efficaces d'ENDF/B-VII. Les incertitudes statistiques à un sigma associées à ces calculs sont inférieures à 0,01%. Précisons que les simulations dédiées à ces calculs ont également été réalisées en tenant compte des spectres en énergie des électrons que nous avons mesurés sur l'installation SAPHIR. Les intensités moyennes d'émission ont été obtenues en multipliant le taux de production $(\gamma, n) + 2(\gamma, 2n)$ ou le taux de production (γ, xn) , correspondant à un nombre de neutrons par électron, par le nombre d'électrons délivrés par l'accélérateur pendant les impulsions ($6,25 \cdot 10^{17}$ électrons par seconde, qui correspondent à l'intensité crête de 100 mA), par la durée de l'impulsion (2,5 μ s), et par la fréquence de tir (50 Hz). Les résultats obtenus sont rassemblés dans le tableau 2.7.

	14 MeV	17 MeV
Tungstène	$2,72 \cdot 10^{10}$ n/s	$7,69 \cdot 10^{10}$ n/s
Tantale	$2,33 \cdot 10^{10}$ n/s	$6,53 \cdot 10^{10}$ n/s

Tableau 2.7 : Simulations MCNPX des intensités moyennes du flux de photoneutrons émis par la cible de tantale ou de tungstène du LINAC de SAPHIR irradiée par des électrons présentant une énergie moyenne de 14 MeV ou 17 MeV.

Afin d'évaluer la fiabilité des spectres en énergie des photoneutrons et des intensités moyennes d'émission déterminés par simulation, nous avons comparé en absolu les aires nettes des spectres gamma de désactivation obtenues par simulation avec celles mesurées. Les aires nettes simulées ont été calculées à l'aide de l'équation suivante (cf. annexe 1) :

$$S_{\gamma} = \tau_{(n,\gamma)} \varepsilon_{\gamma} p_{\gamma} \frac{1 - e^{-n\lambda T}}{1 - e^{-\lambda T}} t_1 e^{-\lambda t_2} (1 - e^{-\lambda t_3})$$

Dans cette équation, S_{γ} représente l'aire nette du pic du photon gamma d'intérêt (en coups), $\tau_{(n,\gamma)}$ est le taux de réaction (n, γ) (en s^{-1}), ε_{γ} est l'efficacité de détection absolue à l'énergie du photon gamma, p_{γ} est la probabilité d'émission du photon gamma, n correspond au nombre d'impulsions durant l'irradiation (30000 impulsions), λ est la constante de décroissance radioactive (en s^{-1}), T est la durée entre deux impulsions (période des tirs pulsés de 20 ms). Enfin, t_1 , t_2 , et t_3 , correspondent respectivement à la durée de l'impulsion (2,5 μs), au temps de refroidissement (2 min), et à la durée de comptage (10 min). Les taux de réactions calculés avec MCNPX étant normalisés par électron, $\tau_{(n,\gamma)}$ est obtenu en multipliant le taux de réaction (n, γ) simulé par le nombre d'électrons délivrés par l'accélérateur en une seconde ($6,25 \cdot 10^{17}$ électrons par seconde). L'efficacité de détection absolue a été déterminée grâce à un modèle de notre détecteur germanium simulé avec MCNPX.

Nous avons d'abord procédé à l'estimation de l'incertitude globale sur les paramètres temporels de l'accélérateur, à savoir : la durée de l'impulsion, la fréquence de tir, et l'intensité crête du courant d'électrons. Cette incertitude a été déterminée par comparaison entre calcul et mesure du taux de photofission dans des échantillons d' ^{238}U . Ces mesures ont consisté à compter les neutrons retardés de photofission avec des détecteurs à ^3He contenus dans des blocs de détection constitués de polyéthylène et enrobés de cadmium. Ces mesures ont été effectuées avec différents échantillons. Pour les deux valeurs moyennes du spectre en énergie des électrons considérées au sein de cette étude (14 MeV et 17 MeV), les simulations surestiment l'expérience d'un facteur 1,14. La fiabilité du modèle du détecteur germanium a également été évaluée par comparaison entre mesure et calcul d'efficacités de détection absolues. Les mesures ont été effectuées avec des sources ponctuelles de ^{60}Co , ^{137}Cs , et ^{152}Eu . Nos résultats sont exposés sur la figure 2.30.

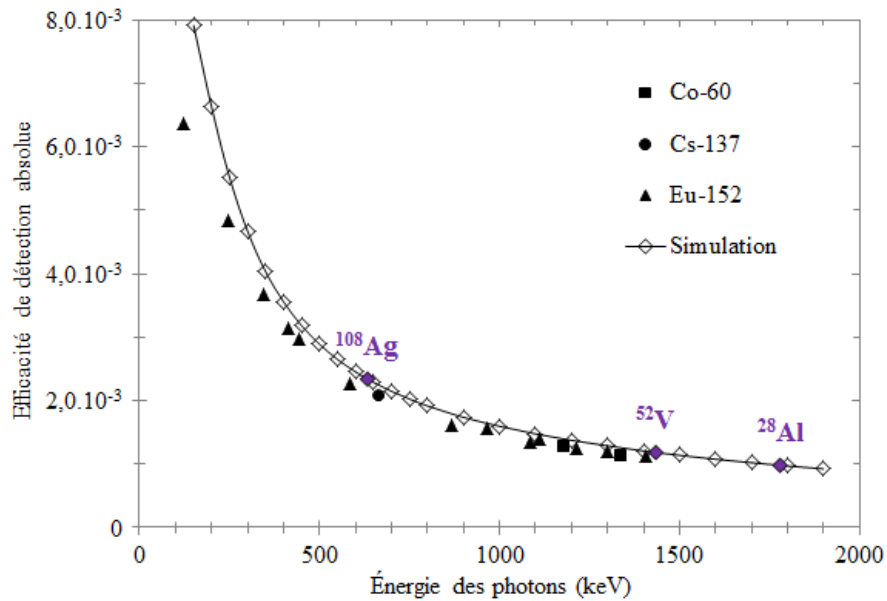


Figure 2.30 : Comparaison entre efficacités de détection gamma mesurées et simulées pour le détecteur GEM40P-PLUS fabriqué par ORTEC.

Dans la gamme d'énergie des photons gamma d'intérêt (de 633 keV à 1,78 MeV), les efficacités de détection absolues simulées surestiment celles obtenues expérimentalement d'un facteur 1,08 (différences potentielles entre la géométrie du cristal et son modèle, présence potentielle de zones mortes). Les incertitudes statistiques à un sigma associées aux résultats de simulation des taux de réaction sont comprises entre 1% et 3%. Celles associées aux efficacités de détection absolues sont inférieures à 0,4%. Pour la cible de tantale et la cible de tungstène, les aires nettes calculées tiennent compte des deux facteurs de correction discutés précédemment (facteur 1,14 et facteur 1,08). Un troisième facteur de correction a été pris en compte pour les calculs réalisés pour le cas de la cible de tungstène. Ce paramètre tient compte de la sous-estimation de la production photoneutronique dans les simulations MCNPX qui est due aux erreurs sur les seuils de sections efficaces (γ, xn) d'ENDF/B-VII. Ce facteur de correction a été obtenu par simulation en déterminant l'écart entre un taux de production (γ, xn) (en utilisant les sections efficaces d'ENDF/B-VII) et un taux de production (γ, n) + 2($\gamma, 2n$) dans la cible de tungstène (en utilisant les sections efficaces de CNDC). Ces calculs ont été déterminés en tenant compte des spectres en énergie des électrons mesurés. Ce troisième facteur de correction, pour les calculs d'aires nettes réalisés dans le cas de la cible de tungstène, a été pris en compte en multipliant les aires nettes correspondantes par un facteur 1,278 et 1,171 respectivement pour le cas des mesures réalisées pour une énergie moyenne d'électrons de 14 MeV et 17 MeV. Les rapports entre aires nettes calculées et mesurées ont été déterminés pour chaque position angulaire du détecteur à activation. Cependant, seules trois positions ont été retenues pour déterminer une valeur moyenne de ces rapports — les positions 60°, 120° et 150° — pour lesquelles le détecteur à activation est positionné hors du champ de photons et où les effets du porte-cible sont les plus faibles. Chaque simulation a été réalisée deux fois en considérant une bibliothèque de sections efficaces (n, γ) différente dans les deux simulations : la bibliothèque d'ENDFB/VI [ENDF/B-

VI.8] et celle d'ENDL-92 du *Lawrence Livermore National Laboratory*. Les valeurs moyennes des ratios entre aires nettes simulées et mesurées sont présentées dans le tableau 2.8 (incertitudes statistiques à un sigma inférieures à 3% pour le vanadium et l'aluminium, et inférieures à 10% pour l'argent). Les incertitudes statistiques expérimentales étant faibles, l'incertitude statistique globale sur ces résultats provient majoritairement de l'incertitude statistique sur le calcul de taux de réaction (n, γ).

		ENDL-92			ENDF/B-VI		
		V	Ag	Al	V	Ag	Al
14 MeV	Tungstène	0,65	0,88	0,56	0,56	0,98	0,65
	Tantale	0,66	0,96	0,51	0,56	1,09	0,59
17 MeV	Tungstène	0,57	0,86	0,44	0,52	0,92	0,49
	Tantale	0,56	0,85	0,43	0,51	0,90	0,47

Tableau 2.8 : Ratios entre aires nettes calculées et mesurées (trois facteurs de correction inclus), détecteur à activation contenant la plaque de vanadium, d'argent ou d'aluminium et cible de tantale ou de tungstène irradiée par des électrons présentant une énergie moyenne de 14 MeV ou 17 MeV. Calculs réalisés avec les sections efficaces de réaction (n, γ) issues d'ENDL-92 ou d'ENDF/B-VI.

Plusieurs commentaires peuvent être faits à la lecture de ces résultats. Soulignons tout d'abord que l'écart maximal entre un même calcul réalisé en s'appuyant alternativement sur les sections efficaces de réaction (n, γ) d'ENDF/B-VI ou celles d'ENDL-92 est de 0.13 (plaque d'argent, cible de tantale irradiée par des électrons de 14 MeV). De manière générale, la simulation sous-estime l'expérience de près d'un facteur deux, ce qui est en accord avec les résultats publiés récemment par K. Kosako *et al.* [Kosako11]. Cette équipe s'est intéressée à l'activation neutronique de différents matériaux (aluminium, indium et or) par des photoneutrons générés par un accélérateur délivrant des électrons de 18 MeV, 28 MeV, ou 38 MeV. Ces derniers ont trouvé une sous-estimation de la simulation par rapport à l'expérience d'un facteur compris entre 1,5 et 2,5 pour les mesures réalisées à l'énergie de 18 MeV, et un bon accord aux deux autres énergies. Nous soulignons à cette occasion que les publications présentant des résultats en absolu sur ce type de mesure sont rares dans la littérature. À première vue, les écarts obtenus pour l'activation de la plaque d'argent paraissent en meilleur accord que ceux obtenus pour les plaques de vanadium ou d'aluminium. Cependant, il est probable que cet effet provienne d'une surévaluation des sections efficaces de réaction (n, γ) sur ^{108}Ag . Il est aussi important de noter qu'un désaccord d'environ 20% peut être trouvé dans la littérature sur la valeur de la probabilité d'émission du

photon gamma émis par l' ^{108}Ag à 633 keV (valeur de 1,76% dans ENDF/B-VII et 2,1% dans JEFF-3.1.1).

Nous convergeons finalement vers la même conclusion que celle à laquelle l'équipe de K. Kosako est arrivée (étude réalisée avec une cible de tungstène et une cible de cuivre). Il est probable que les écarts entre simulation et expérience soient dus à une sous-évaluation des sections efficaces photonucléaires du tungstène, mais aussi du tantale, dans la gamme d'énergie étudiée. Cependant, il est important de souligner que nous avons identifié une erreur dans la déclaration du carbone du polyéthylène dans nos fichiers MCNPX, erreur ayant entraîné l'utilisation de modèles MCNPX plutôt que les sections efficaces d'ENDF/B-VI pour le carbone. L'écart que nous attribuons à la sous-évaluation des sections efficaces photonucléaires est finalement compris entre 15% et 30%. On peut aussi mentionner que K. Kosako *et al.* attribuent notamment la sous-évaluation des sections efficaces photonucléaires à la sous-estimation du maximum de section efficace situé autour de 15 MeV [Kosako11]. Les écarts entre simulation et expérience que nous obtenons, plus importants à l'énergie moyenne de 17 MeV que pour celle de 14 MeV, confortent cette conclusion. Nous avons cherché à savoir si une bibliothèque récente (TENDL-2012, disponible depuis janvier 2013) contenait de nouvelles sections efficaces de production (γ , xn) pour les différents isotopes du tungstène et du tantale. À titre d'illustration, les figures 2.31 et 2.32 comparent respectivement les sections efficaces de production (γ , xn) d'ENDF/B-VII du ^{181}Ta et du ^{184}W (disponibles avec MCNPX et générées par le module ACE du code NJOY) avec celles de JENDL et de TENDL-2012. Dans le cas du ^{184}W , nous présentons également les sections efficaces de production (γ , xn) de CNDC construites manuellement à partir des sections efficaces (γ , n) et (γ , 2n) avec pondération d'un facteur deux.

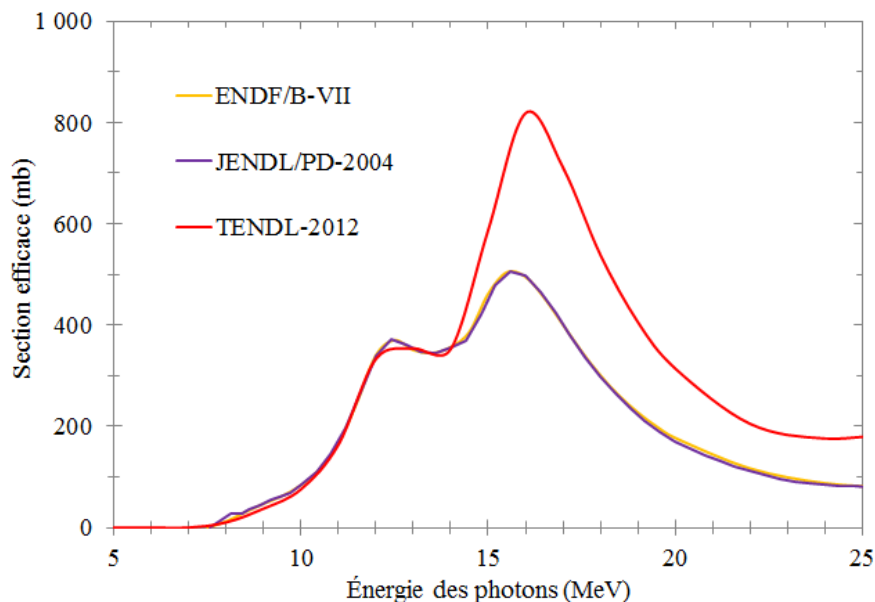


Figure 2.31 : Sections efficaces de production (γ , xn) du ^{181}Ta .

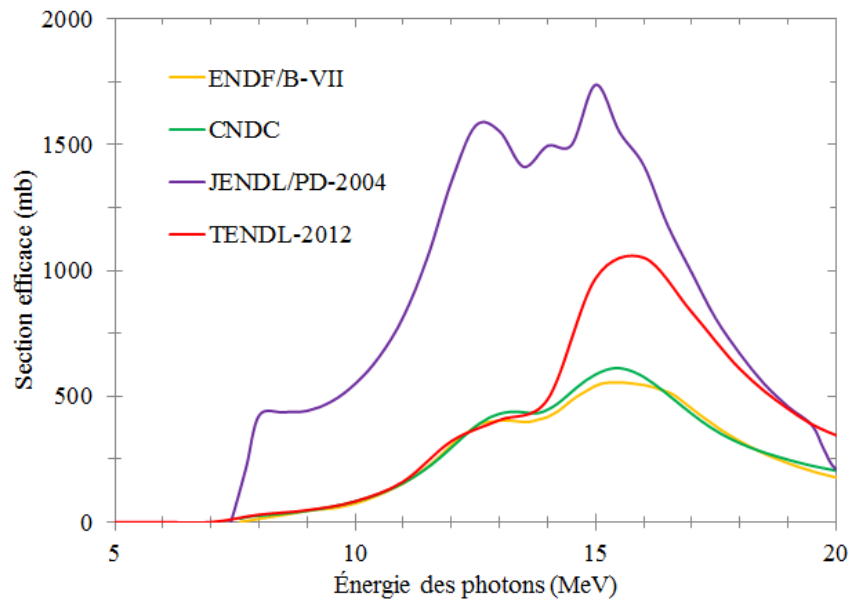


Figure 2.32 : Sections efficaces de production (γ , xn) du ^{184}W .

Pour le ^{181}Ta , nous pouvons voir que le maximum de section efficace (situé autour de 16 MeV) a été réévalué dans TENDL-2012. Le même commentaire peut-être effectué pour les sections efficaces TENDL-2012 du ^{184}W . Cependant, pour ce dernier isotope, les sections efficaces provenant de JENDL sont largement supérieures à celles d'ENDF/B-VII et de TENDL-2012. Nous signalons cependant que les sections efficaces proposées dans TENDL-2012 sont déterminées à l'aide d'un code de calcul (TALYS) [TENDL-2012] et que celles-ci n'ont donc pas été remesurées.

En conclusion, les allures et valeurs moyennes des spectres en énergie de photoneutrons obtenus par simulation étant en accord avec la théorie et l'état de l'art, nous concluons que les écarts entre aires nettes calculées et mesurées proviennent essentiellement d'un manque de connaissance des sections efficaces photonucléaires du tungstène et du tantale dans la gamme d'énergie étudiée (entraînant une sous-évaluation de l'intensité moyenne d'émission photoneutronique simulée comprise entre 15% et 30%). Notons bien que l'utilisation de sections efficaces sous-évaluées entraînera à son tour un biais équivalent dans les simulations consacrées au développement de l'interrogation neutronique active avec un tel accélérateur.

3.4 Caractérisation du flux de photoneutrons émis par un accélérateur médical

Les performances de notre méthode de caractérisation du flux de photoneutrons ont été évaluées sur un accélérateur médical de type Saturne 43F conçu par *General Electric*. Ces expériences ont été réalisées au Laboratoire National Henri Becquerel du CEA LIST, localisé sur le centre de Saclay. Le caractère métrologique de cet accélérateur permet d'assurer une grande stabilité du faisceau délivré (garantie d'une dose photons référence dans l'eau). Des mesures ont été réalisées à 12 MV et 20 MV photon (tension accélératrice des électrons de 12 MV et 20 MV correspondant respectivement à une énergie maximale de 12 MeV et

20 MeV pour le spectre de photons de *Bremsstrahlung*), irradiant un champ de $10 \times 10 \text{ cm}^2$ (situé à un mètre de la cible de conversion). Précisons à cette occasion que nous retiendrons les terminologies « 12 MV photon » et « 20 MV photon » qui sont celles employées dans le domaine de la radiothérapie. L'intensité crête du courant d'électrons était respectivement de 10 mA et 30 mA à 12 MV et 20 MV photon. La durée de l'impulsion était de $4 \mu\text{s}$ et la fréquence de répétition de 100 Hz.

3.4.1 Profil

La distribution spatiale du flux de photoneutrons émis par cet accélérateur a été déterminée en fonction d'un profil de type radiothérapie. Le détecteur à activation a d'abord été positionné à un mètre face à la cible de conversion, puis déplacé perpendiculairement à l'axe du faisceau d'électrons en différentes positions. À l'exception de la configuration mise en place pour la mesure de distribution spatiale, nous avons suivi le même protocole expérimental que celui suivi pour la caractérisation du flux de photoneutrons généré par l'accélérateur d'électrons de l'installation SAPHIR. Le même détecteur à activation, les mêmes plaques de matériaux, le même détecteur germanium, et la même chaîne d'acquisition de spectrométrie numérique ont été utilisés. La figure 2.33 illustre la configuration expérimentale mise en place lors de cette campagne de mesure durant les phases d'irradiation et de détection.

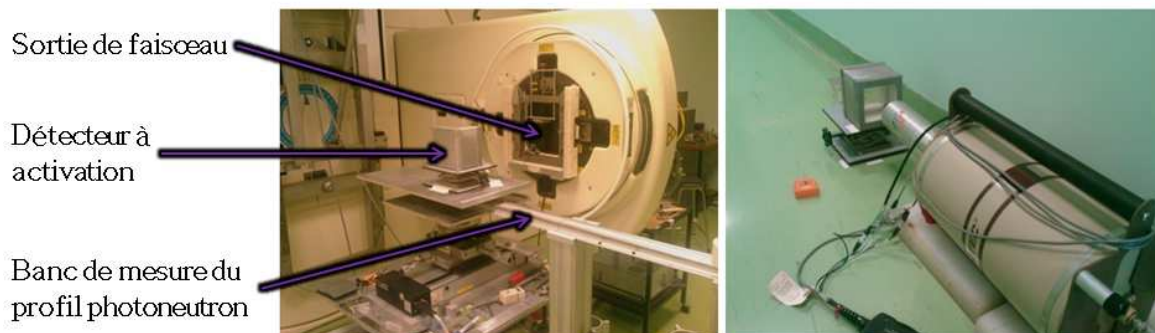


Figure 2.33 : Détecteur à activation sur le banc de mesure du profil photoneutron face à l'accélérateur médical (à gauche), et acquisition de spectre gamma de désactivation (à droite).

La figure 2.34 présente le profil d'émission photoneutronique obtenu à 20 MV photon, mesurés avec le détecteur à activation contenant une plaque d'argent ou une plaque de vanadium. Les profils sont normalisés par rapport à la position 10 cm (position à partir de laquelle le détecteur à activation n'est a priori plus irradié par des photons de haute énergie). Compte tenu de la statistique de comptage élevée, les barres d'erreurs sont négligeables. Les profils présentent une allure similaire. Ils diminuent du champ de photons vers les positions excentrées. Rappelons que le désaccord observé en position 0 cm est dû à la production d' ^{108}Ag par activation photonique (γ, n) sur l' ^{109}Ag . L'écart obtenu pour cette position et ce matériau est moins important à 12 MV photon qu'à 20 MV photon (figure non présentée) en raison de l'allure de la section efficace (γ, n), cf. figure 2.28.

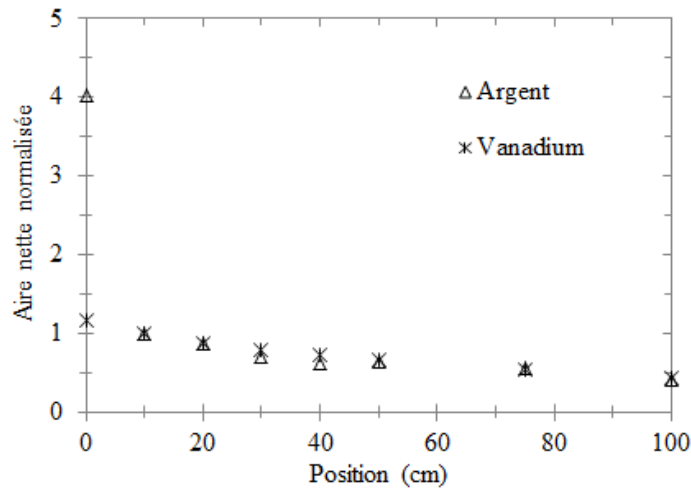


Figure 2.34 : Profils d'émission photoneutronique de l'accélérateur Saturne 43F mesurés par activation d'argent ou de vanadium à 20 MV photon.

La figure 2.35 compare les profils d'émission des photoneutrons mesurés par activation du vanadium à 12 MV et 20 MV photon. Les profils sont ici normalisés par rapport à la position 0 cm (barres d'erreur négligeables). L'allure des profils est la même. Les profils diminuent progressivement du champ de photons vers la périphérie de telle manière que deux fois moins de neutrons sont détectés à un mètre du champ de photons.

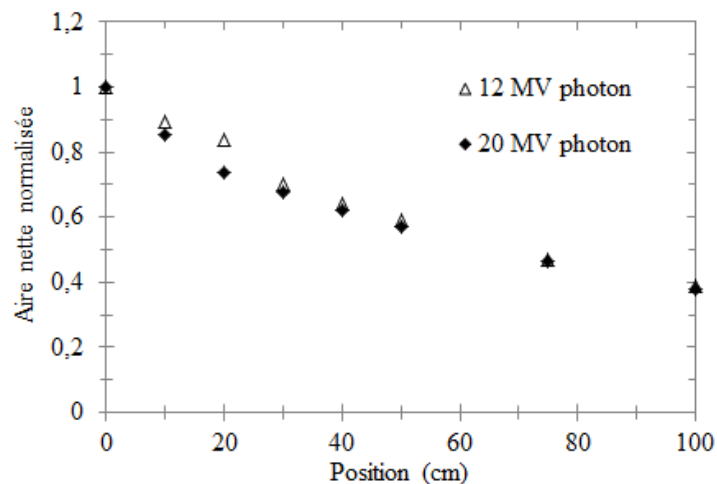


Figure 2.35 : Profils d'émission photoneutroniques mesurés par activation de vanadium à 12 MV et 20 MV photon.

3.4.2 Évaluation du modèle MCNPX

L'accélérateur médical Saturne 43F possède une géométrie complexe en comparaison à celle de l'accélérateur d'électrons de l'installation SAPHIR. Une visualisation de la modélisation MCNPX de l'accélérateur à 12 MV ou 20 MV photon est exposée sur la figure 2.36. Les principaux composants de l'accélérateur y sont indiqués. Mis à part le spectre en énergie des électrons, la géométrie du cône égalisateur est la seule différence entre ces

deux modèles. Le modèle de simulation MCNPX de l'accélérateur Saturne 43F à 20 MV photon a été réalisé dans le cadre de cette thèse.

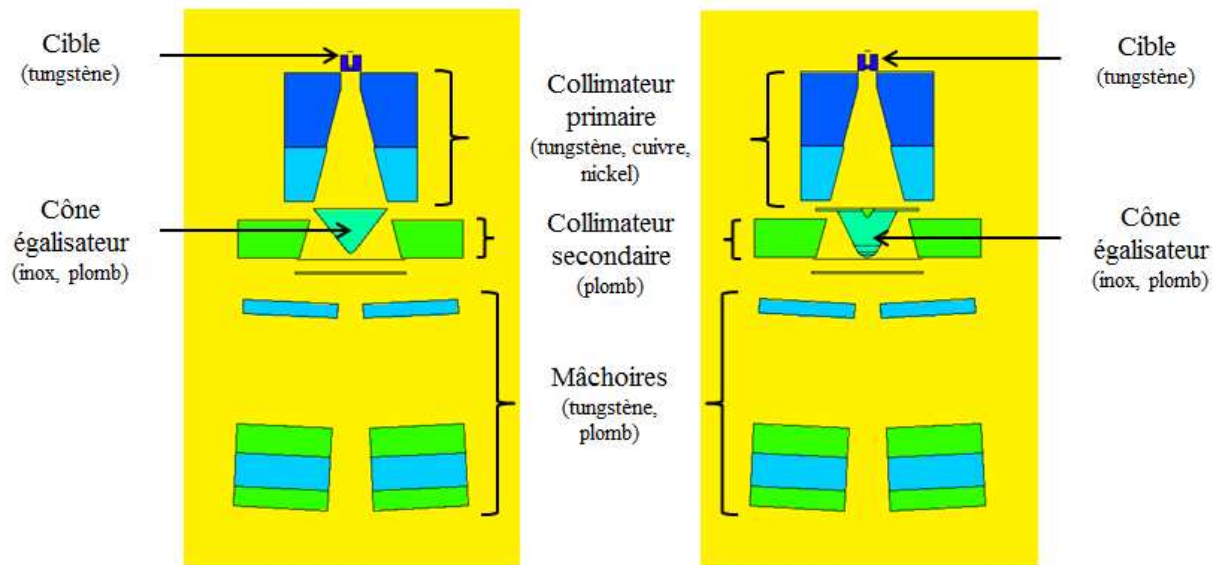


Figure 2.36 : Visualisation MCNPX de l'accélérateur médical Saturne 43F. Modèles à 12 MV et 20 MV photon respectivement à gauche et à droite.

Nous avons d'abord procédé à l'identification des matériaux et des composants à l'origine de la production de photoneutrons dans l'accélérateur. Ces calculs (de type *tally tagging* dans MCNPX) ont été réalisés en se basant sur le flux de photoneutrons traversant une surface d'un mètre carré, située à un mètre de la cible de conversion et orthogonale à l'axe des électrons. Les tableaux 2.9 et 2.10 rassemblent les résultats obtenus. Nous montrons ainsi que, pour les deux modèles de l'accélérateur médical (12 MV et 20 MV photon), les photoneutrons sont majoritairement produits par réactions photonucléaires dans le tungstène et le plomb, comme cela est rapporté dans la littérature [Naseri10]. Concernant la localisation de ces réactions, les mâchoires de l'accélérateur constituent la source principale des photoneutrons parvenant au plan de mesure situé à un mètre de la cible. Notons bien que ces résultats sont dépendants du modèle d'accélérateur médical étudié.

	12 MV photon	20 MV photon
Tungstène	68,1%	68,2%
Plomb	28,8%	21,3%
Fer	2,2%	8,3%
Autre	0,9%	2,2%

Tableau 2.9 : Contribution des matériaux de l'accélérateur médical à la production de photoneutrons pour les modèles à 12 MV ou 20 MV photon.

	12 MV photon	20 MV photon
Cible de conversion	15,4%	15,4%
Collimateur primaire	15,4%	20,2%
Collimateur secondaire	3,5%	3,1%
Cône égalisateur	0,5%	3,3%
Mâchoires	64,4%	55,6%
Autre	0,8%	2,4%

Tableau 2.10 : Contribution des composants de l'accélérateur médical à la production de photoneutrons pour les modèles à 12 MV ou 20 MV photon.

Nous avons ensuite évalué qualitativement les deux modèles de simulation MCNPX de l'accélérateur médical par comparaison entre simulation et expérience pour la mesure du profil de photoneutrons. Nous avons retenu le cas de la mesure réalisée avec du vanadium, ce matériau présentant la statistique de comptage la plus élevée. Ces comparaisons sont présentées sur les figures 2.37 et 2.38. Les résultats expérimentaux sont normalisés à une en position 0 cm, et les résultats de simulation sont superposés aux résultats expérimentaux à l'aide d'un *offset* (recalage entre simulation et expérience en position 10 cm). Il est important de souligner que ces simulations ont nécessité une puissance de calcul importante. À titre d'exemple, les résultats de simulation à 12 MV photon correspondent à une durée totale de près de deux ans de calcul sur un seul processeur.

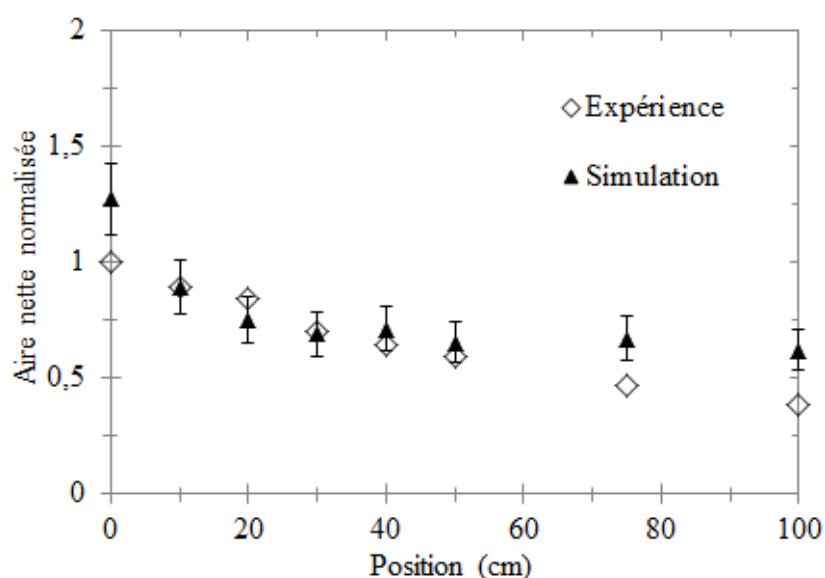


Figure 2.37 : Profils d'émission photoneutronique mesurés et simulés à 12 MV photon, détecteur à activation contenant une plaque de vanadium.

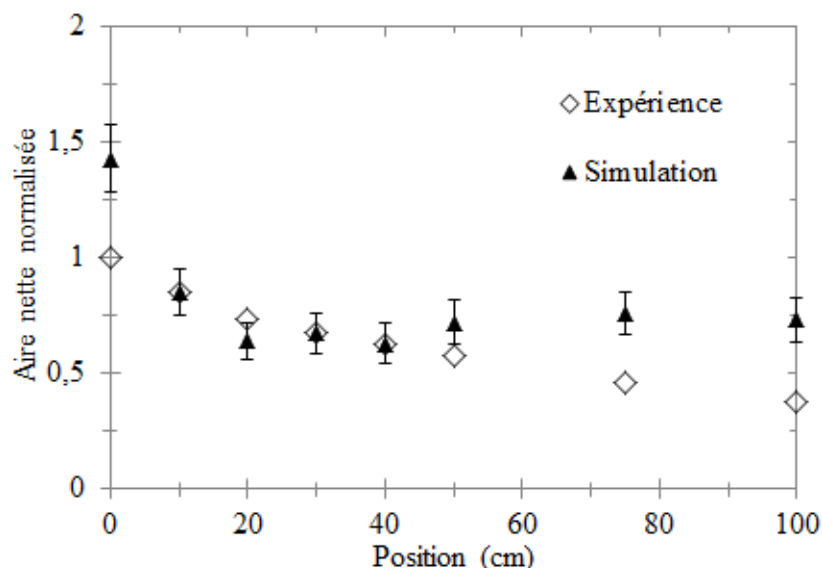


Figure 2.38 : Profils d'émission photoneutronique mesurés et simulés à 20 MV photon, détecteur à activation contenant une plaque de vanadium.

Des désaccords entre l'expérience et la simulation apparaissent dans le champ de photons (position 0 cm) et dans les positions les plus excentrées (position 75 cm et 100 cm). Afin de déterminer les causes des désaccords mis en évidence entre simulation et expérience, nous avons déterminé, pour chaque position du détecteur à activation, les matériaux et les composants impliqués dans la production photoneutronique. Nous présentons les résultats obtenus à 20 MV photon sur la figure 2.39 (calculs MCNPX).

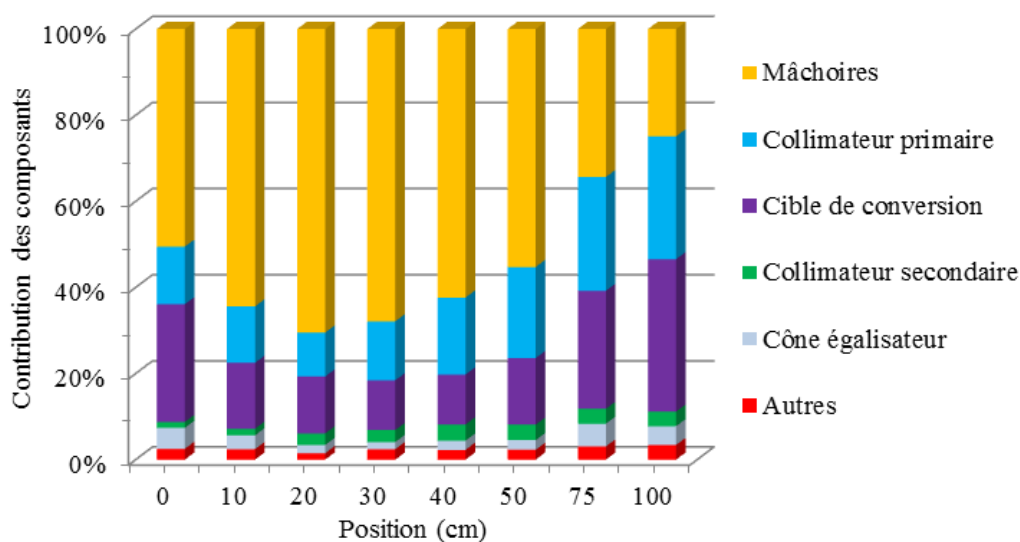


Figure 2.39 : Contribution des composants de l'accélérateur médical au signal mesuré par le détecteur à activation en chaque position, résultats obtenus à 20 MV photon.

Un des points d'interrogation concernait la remontée de la contribution de la cible de conversion observée aux positions éloignées du champ d'irradiation de photons. Soulignons que cet effet, également observé à 12 MV photon, a été l'objet de discussions avec plusieurs

experts du Laboratoire National Henri Becquerel. Notre conclusion est que cette remontée n'est pas représentative du fait de l'absence de modélisation de certains éléments externes de l'accélérateur (masquant la cible de conversion aux positions 75 cm et 100 cm), comme indiqué sur la figure 2.40. Notons à cette occasion que les modèles d'accélérateurs médicaux sont rarement évalués pour des positions aussi éloignées du champ d'irradiation de photons comme nous l'avons réalisé au sein de cette étude.

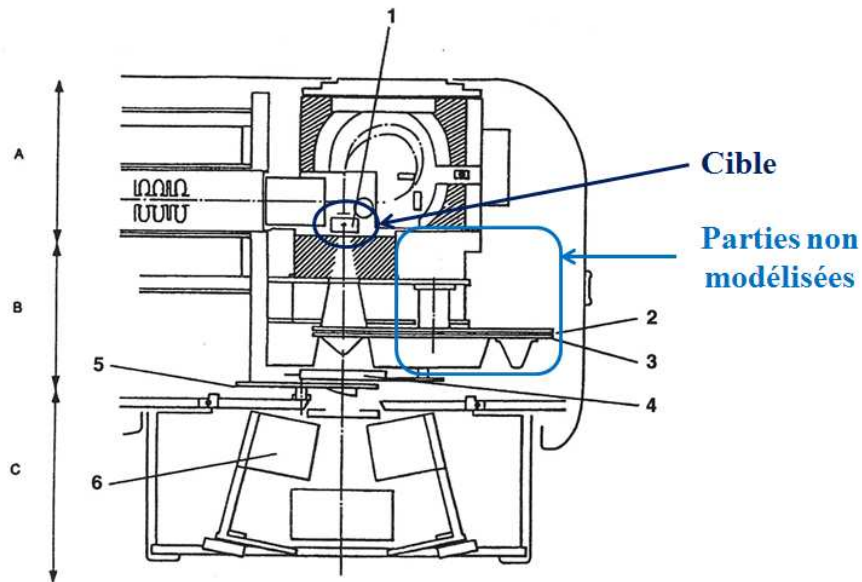


Figure 2.40 : Schéma de l'accélérateur d'électrons Saturne 43F [Gen_Elec].

La contribution de la cible aux positions éloignées du champ de photons a également été l'objet de plusieurs échanges avec un autre doctorant de notre département, Igor Bessières [Bessières13]. Celui-ci a comparé simulation et expérience pour une dose photon déposée dans une cuve d'eau et a obtenu une remontée du signal aux positions excentrées par simulation en désaccord avec ses mesures. Cet échange a ainsi permis de valider l'hypothèse selon laquelle la cible de conversion est masquée par des éléments non modélisés de l'accélérateur. Les résultats des nouveaux calculs réalisés en tenant compte de l'absence de contribution de la cible de conversion aux deux positions les plus excentrées (positions 75 cm et 100 cm) sont présentés sur les figures 2.41 et 2.42. L'accord entre la simulation et l'expérience est ainsi amélioré de manière satisfaisante. Nous pouvons également noter que le modèle de l'accélérateur à 12 MV photon présente de meilleurs résultats en relatif que celui à 20 MV photon.

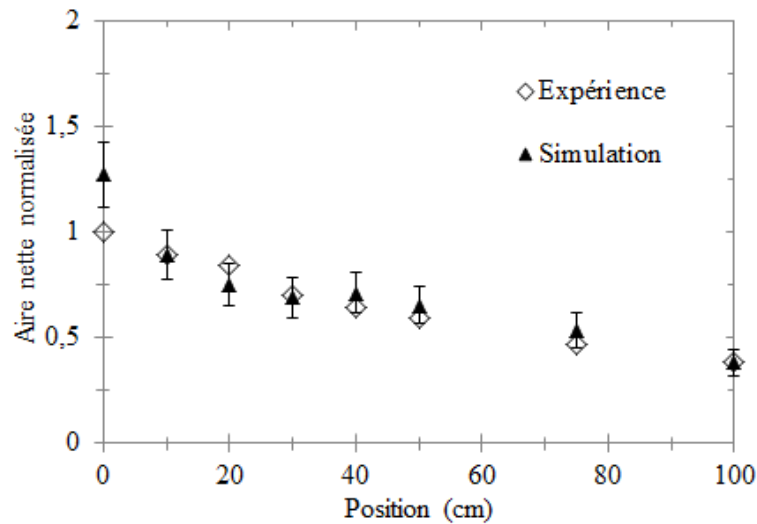


Figure 2.41 : Profils d'émission photoneutronique mesurés et simulés à 12 MV photon par activation de vanadium, sans contribution de la cible aux positions 75 cm et 100 cm.

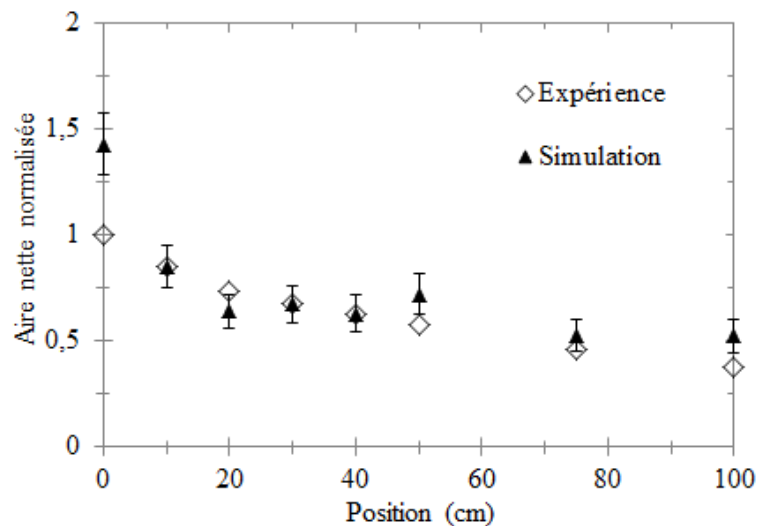


Figure 2.42 : Profils d'émission photoneutronique mesurés et simulés à 20 MV photon par activation de vanadium, sans contribution de la cible aux positions 75 cm et 100 cm.

Afin d'expliquer le désaccord observé dans le champ d'irradiation photonique (position 0 cm), plusieurs hypothèses ont été testées. Nous avons montré précédemment que les sections efficaces de production (γ , xn) du tungstène sont sous-évaluées dans la gamme d'énergie étudiée. La production photoneutronique de l'accélérateur médical par simulation est donc sous-estimée. Rappelons également que le signal mesuré par le détecteur à activation en position 0 cm (dans le champ d'irradiation photon) correspond à une superposition de deux composantes : une contribution des photoneutrons provenant de l'accélérateur, et une contribution parasite due aux photoneutrons provenant essentiellement du cadmium. Le désaccord entre simulation et expérience observé en position 0 cm pourrait donc s'expliquer par le fait que la contribution du cadmium du détecteur à activation soit trop élevée par rapport à celle des photoneutrons délivrés par l'accélérateur.

3.4.3 Spectre en énergie et intensités moyennes d'émission

Les spectres en énergie du flux de photoneutrons générés par l'accélérateur d'électrons médical ont été déterminés par simulation MCNPX. Ces calculs ont été réalisés en comptant les photoneutrons traversant une sphère modélisée autour de l'accélérateur par intervalle d'énergie de 200 keV. Les figures 2.43 et 2.44 présentent les spectres obtenus respectivement à 12 MV et 20 MV photon. Ces spectres sont similaires à ceux obtenus pour l'accélérateur d'électrons de l'installation SAPHIR et leur énergie moyenne est d'environ 1 MeV. Rappelons une nouvelle fois que cette valeur est en accord avec la théorie et la littérature.

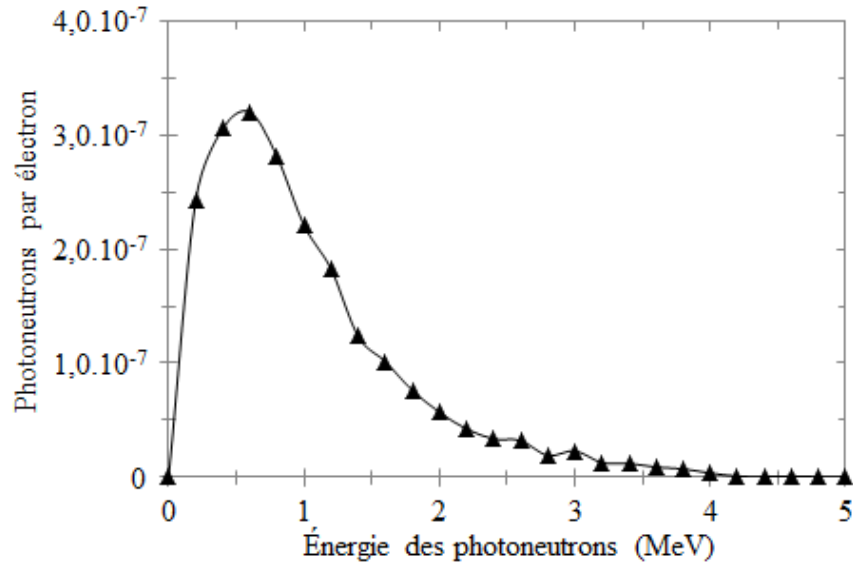


Figure 2.43 : Spectre en énergie des photoneutrons émis par l'accélérateur médical à 12 MV photon.

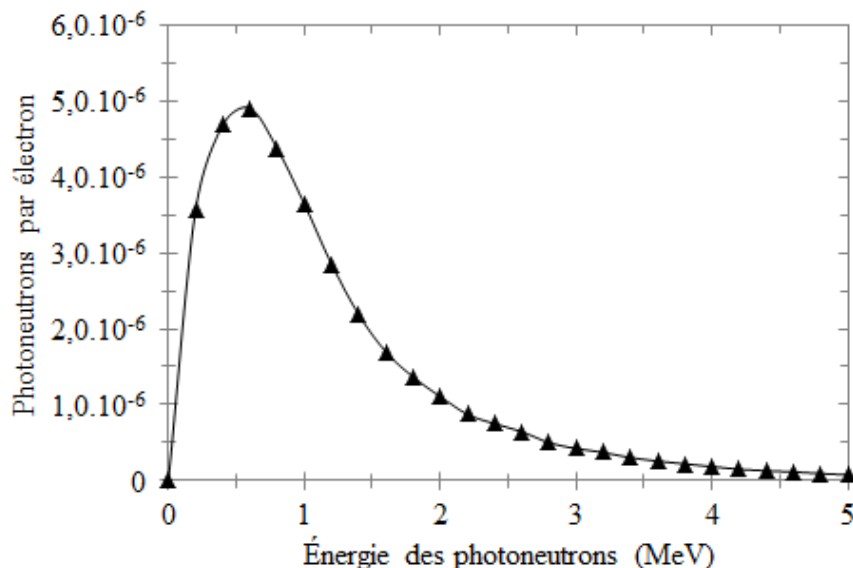


Figure 2.44 : Spectre en énergie des photoneutrons émis par l'accélérateur médical à 20 MV photon.

Les intensités moyennes d'émission ont été calculées dans 4π stéradians. Ces calculs ont été effectués en comptant les neutrons traversant une sphère simulée autour de l'accélérateur. Les incertitudes statistiques à un sigma sur ces calculs sont inférieures à 0,01%. En multipliant le résultat obtenu (nombre de neutrons par électron) par le nombre d'électrons délivrés par l'accélérateur en une seconde pendant les impulsions ($6,25 \cdot 10^{16}$ et $1,88 \cdot 10^{17}$ électrons par seconde, correspondant aux intensités crêtes de 10 mA et 30 mA respectivement à 12 MV et 20 MV photon), par la durée de l'impulsion (4 μ s), et par la fréquence de tir (100 Hz), nous obtenons les valeurs suivantes : $1,61 \cdot 10^9$ neutrons par seconde à 12 MV photons ; et $8,75 \cdot 10^{10}$ neutrons par seconde à 20 MV photon.

La même méthodologie que celle présentée pour le cas de l'étude de caractérisation du flux de photoneutrons émis par l'accélérateur d'électrons de l'installation SAPHIR a été employée afin d'évaluer les résultats de simulation des spectres en énergie et intensités moyennes d'émission. Cependant, pour des raisons de temps de calcul, l'évaluation des aires nettes a été réalisée pour une unique bibliothèque de sections efficaces de réaction (n, γ) : ENDL-92. L'incertitude globale sur les paramètres temporels de l'accélérateur (intensité crête du courant d'électrons, durée de l'impulsion, et fréquence) a été considérée comme négligeable en raison de la nature métrologique de cet accélérateur. Soulignons cependant qu'un certain nombre d'acquisitions ont été dupliquées afin de s'assurer de la reproductibilité de nos mesures. Ayant utilisé le même détecteur germanium pour réaliser la caractérisation du flux de photoneutrons émis par les deux accélérateurs, nous avons considéré le même facteur de correction de 8% relatif aux efficacités de détection absolues simulées. Nous avons réalisé nos simulations avec les sections efficaces photonucléaires d'ENDF/B-VII pour le tungstène et avec les données disponibles dans MCNPX pour les autres matériaux (selon les isotopes : KAERI, CNDC ou LANL). Plusieurs matériaux étant impliqués dans la production de neutrons par l'accélérateur médical, un facteur de correction sur les erreurs de seuil de sections efficaces (γ, xn) du tungstène n'a pu être pris en compte dans ces calculs. À 20 MV photon, les incertitudes statistiques à un sigma associées aux calculs de taux de réaction (n, γ) sont inférieures à 7% pour le cas du détecteur à activation positionné dans le champ d'irradiation photonique (position 0 cm), et inférieures à 12% pour les autres cas. À 12 MV photon, ces incertitudes prennent respectivement les valeurs de 10% et 15%. Pour les cas de figure où le détecteur à activation est positionné hors du champ de photons, nous avons calculé les valeurs moyennes des écarts entre simulation et expérience. Nos résultats sont présentés dans le tableau 2.11. Comme précédemment, l'incertitude statistique globale sur ces résultats est dominée par l'incertitude statistique sur les résultats de calcul de taux de réaction (n, γ).

	12 MV photon			20 MV photon		
	V	Ag	Al	V	Ag	Al
Champ 10×10 cm ²	0,12	-	-	0,79	-	0,83
Hors-champ	0,11	-	-	0,61	0,95	-

Tableau 2.11 : Ratios entre aires nettes calculées et mesurées, détecteur à activation contenant la plaque de vanadium, d'argent ou d'aluminium, pour l'accélérateur médical à 12 MV ou 20 MV photon. Calculs réalisés avec les sections efficaces de réaction (n, γ) issues d'ENDL-92.

De manière générale, la tendance mise en évidence est la même que celle observée précédemment lors de l'étude de la caractérisation du flux de photoneutrons émis par l'accélérateur d'électrons de l'installation SAPHIR. Nous pouvons cependant souligner que les simulations réalisées pour la caractérisation du flux de photoneutrons émis par l'accélérateur médical ont été réalisées sans erreur sur la déclaration du carbone dans les fichiers MCNPX et donc avec les sections efficaces du carbone d'ENDF/B-VI. La simulation sous-estime l'expérience, et comme attendu suite à l'absence de prise en compte de correction des erreurs de seuil des sections efficaces (γ , xn) du tungstène, un désaccord très important apparaît entre simulation et expérience à 12 MV photon (un écart de près d'un facteur dix). À 20 MV photon, l'écart observé reste voisin d'un facteur deux (rapport de 0,61 pour le vanadium hors-champ). L'écart obtenu entre la simulation et l'expérience est meilleur à 20 MV photon compte tenu du fait que l'impact des erreurs de seuil de sections efficaces (γ , xn) du tungstène est moins important pour les simulations réalisées à 20 MV photon que pour celles réalisées à 12 MV photon.

Précisons qu'il est préférable d'évaluer spectres en énergie et intensités d'émission moyenne en s'intéressant au cas du vanadium activé hors du champ d'irradiation photonique pour deux raisons. Premièrement, le signal mesuré dans le champ est parasité par des photoneutrons générés dans le cadmium et la plaque du détecteur à activation. Deuxièmement, nous avons émis des doutes concernant la fiabilité des données nucléaires pour l'activation d'argent (sections efficaces de réaction (n, γ) sur l'¹⁰⁷Ag et probabilité d'émission du photon à 633 keV par l'¹⁰⁸Ag) suite à l'étude de caractérisation du flux de photoneutrons généré par l'accélérateur de l'installation SAPHIR. Les allures et valeurs moyennes des spectres en énergie de photoneutrons obtenus par simulation étant en accord avec la théorie et l'état de l'art, nous concluons finalement que les résultats des calculs d'intensités moyennes d'émission photoneutronique obtenus sur l'accélérateur Saturne 43F sont sous-estimés de l'ordre d'un facteur dix à 12 MV photon et de l'ordre d'un facteur deux à 20 MV photon.

Enfin, remarquons que ces mesures auraient également pu permettre de déterminer directement la dose photoneutronique délivrée par l'accélérateur aux différentes positions étudiées. Cependant, nous ne disposons pas de sources de ^{252}Cf [McCall81] ou d' $^{241}\text{AmBe}$ [Carinou05] présentant une activité suffisante afin de réaliser cette calibration. De plus, un détecteur à activation de dimensions inférieures, similaires à celles de détecteur à bulles [Bourgeois97], permettrait d'améliorer la résolution spatiale du profil d'émission photoneutronique mesuré dans le champ d'irradiation photonique, tout en présentant l'avantage d'être aisément simulable en comparaison avec de tels détecteurs à bulles.

4. Conclusions

L'objectif de ce chapitre était d'acquérir une fine connaissance du flux de photoneutrons délivré par un accélérateur d'électrons et d'optimiser ce dernier en vue de réaliser des mesures d'interrogation neutronique active avec un tel accélérateur. Les codes de calcul MCNPX et TRIPOLI-4 ont été utilisés en parallèle afin de caractériser par simulation le flux de photoneutrons généré par la cible de conversion d'un accélérateur d'électrons. Nous nous sommes intéressés à des cibles en tantale ou en tungstène. Cette étude a permis de vérifier que nous pouvions nous affranchir de la modélisation du porte-cible. Nous avons montré que le spectre en énergie des photoneutrons est un spectre de Maxwell-Boltzmann dont le maximum est situé à près de 0,5 MeV et dont l'énergie moyenne est d'environ 1 MeV. Dans le cas de la cible de tantale, des désaccords entre théorie et calculs MCNPX ou TRIPOLI-4 ont été mis en évidence à basse énergie probablement en raison d'erreurs dans les données nucléaires d'ENDF/B-VII. Nous avons montré que la distribution angulaire des photoneutrons quittant la cible peut être considérée comme isotrope. Cependant, cette distribution peut être modifiée par des effets de géométrie de la cible de conversion, notamment dans le cas de cibles épaisses. Concernant les intensités d'émission photoneutronique moyenne d'une cible de tungstène déterminées avec MCNPX, nous recommandons de calculer manuellement un taux de production (γ, xn) dans la cible avec les sections efficaces de CNDC, à partir des calculs individuels de taux de réactions (γ, n) et ($\gamma, 2n$) avec pondération d'un facteur deux, afin de s'affranchir d'erreurs de seuils de sections efficaces (γ, xn) du tungstène de CNDC ou d'ENDF/B-VII. Soulignons que nous avons identifié l'origine de ces problèmes de seuil. Ces derniers proviennent d'erreurs de *yield* contenues dans les données nucléaires (erreurs corrigées par l'équipe de développement pour TRIPOLI-4). Nous avons vérifié que ces erreurs sont absentes pour le tantale. L'écart obtenu entre les intensités moyennes d'émission calculées avec MCNPX et TRIPOLI-4 est de l'ordre de 10%. Ce désaccord semble provenir de différences de traitement des données photonucléaires entre les deux codes.

Notre étude d'optimisation de la cible, réalisée avec les codes MCNPX et TRIPOLI-4, a montré qu'une cible de 3 cm d'épaisseur constitue un bon compromis entre maximisation de la production de photoneutrons, anisotropie de la distribution angulaire, et minimisation de la production des photons ayant une énergie supérieure à 6 MeV (photons pouvant parasiter la mesure d'interrogation neutronique active). Les intensités d'émission photoneutroniques

délivrées sont de l'ordre de 10^{11} neutrons par seconde, soit de l'ordre de cent fois supérieure par rapport à celle produite par le générateur GENIE 36 (EADS Sodern) de type deutérium-tritium en fonctionnement normal. Nous rappelons que ce générateur est actuellement utilisé sur des installations industrielles d'interrogation neutronique active dédiées à la caractérisation de colis de déchets radioactifs [Toubon01, Raoux03]. Rappelons enfin que cette thèse, au cours de laquelle un échange avec l'équipe de développement TRIPOLI-4 a été mis en place, a également contribué à l'amélioration de la fiabilité de ce code de calcul pour la production des photoneutrons.

Nous avons également développé une méthode de caractérisation du flux de photoneutrons basée sur la mesure d'activation neutronique. Un détecteur à activation a été conçu par simulation MCNPX puis fabriqué dans le cadre de cette étude. Ce type de détecteur présente les avantages suivants : faible coût, facilité de déploiement, simplicité du modèle de simulation. Cependant, lorsque le détecteur à activation est exposé à un flux de photons de haute énergie, des photoneutrons parasites peuvent être générés dans le cadmium du détecteur et dans la plaque de matériau destinée à être activée. Cependant, la part de signal due aux photoneutrons parasites peut être évaluée par simulation. Les écarts entre simulation et expérience rencontrés au cours de cette étude ont été investigués. Nous avons identifié la principale cause de ces désaccords comme étant la conséquence de la faible connaissance des sections efficaces photonucléaires dans cette gamme d'énergie. Ainsi, même si les modèles de simulation d'accélérateurs médicaux sont validés pour des calculs de dose photonique, ces derniers peuvent fournir des résultats nettement sous-estimés lorsque l'on s'intéresse à la dose photoneutronique. Concernant l'accélérateur d'électrons de l'installation SAPHIR, cette étude a permis d'approfondir la connaissance des caractéristiques du flux de photoneutrons généré. De nouvelles études consacrées au développement de l'interrogation neutronique active avec un accélérateur d'électrons peuvent à présent être réalisées, en considérant un nouveau facteur de correction tenant compte de la sous-évaluation des sections efficaces photonucléaires du tungstène ou du tantale dans la gamme d'énergie d'intérêt. Nous avons estimé l'impact de cette sous-évaluation sur l'émission photoneutronique entre 15% et 30%.

CHAPITRE 3 : INTERROGATION NEUTRONIQUE ACTIVE :

ETUDE DE FAISABILITE

Ce chapitre a pour objectif de démontrer le potentiel d'un accélérateur d'électrons à être utilisé sur une plateforme polyvalente de caractérisation de colis de déchets radioactifs. Nous démontrons la faisabilité de la technique d'interrogation neutronique active en utilisant la cible de conversion de l'accélérateur d'électrons de l'installation SAPHIR comme générateur de photoneutrons. Les signaux correspondant à la détection des neutrons prompts, des neutrons retardés, et des gamma retardés, émis par des échantillons d'uranium ou de plutonium, ont été analysés. Nous illustrons également le potentiel de l'association des résultats de mesures d'interrogation neutronique et photonique actives non simultanées réalisées avec un tel accélérateur d'électrons. Une telle association a été entreprise pour la première fois au cours de ce travail de thèse. Celle-ci a été appliquée à la mesure d'enrichissement de l'uranium. Cette dernière a été réalisée en combinant les signaux des neutrons prompts ou retardés de fission thermique et des neutrons retardés de photofission, et en combinant les signaux des gamma retardés de fission thermique et des gamma retardés de photofission. Dans un premier temps, nous présentons les expressions théoriques des signatures de neutrons prompts, de neutrons retardés, et de gamma retardés [Lyoussi05b]. Nous exposons ensuite les résultats expérimentaux de mesures d'interrogation neutronique active. Enfin, les résultats obtenus par association de résultats de mesures d'interrogation neutronique et photonique actives sont présentés et discutés.

1. Expressions théoriques

Nous attirons l'attention sur le fait que nous détectons les neutrons prompts et les neutrons retardés entre les impulsions délivrées par l'accélérateur d'électrons (comptage inter-pulses) alors que nous effectuons les mesures de gamma retardés après l'irradiation (comptage post-irradiation).

1.1 Signal des neutrons prompts

Le signal des neutrons prompts [Raoux00] peut s'approximer comme suit (en coups) :

$$S_p = \tau_0 \nu_p \varepsilon_p \frac{e^{-\lambda_c t_1} - e^{-\lambda_c t_2}}{\lambda_c}$$

Dans cette équation (voir annexe 2), τ_0 correspond au taux de fission (en fissions par seconde) extrapolé à l'origine des temps prise comme la fin du tir du générateur ou du LINAC, ν_p au nombre moyen de neutrons prompts émis par réaction de fission, ε_p à l'efficacité de détection absolue des neutrons prompts, λ_c à la constante de décroissance des neutrons dans la cellule de mesure (en s^{-1}), et t_1 et t_2 indiquent respectivement les bornes temporelles de début et de fin de la fenêtre de comptage des neutrons prompts.

En définissant la fonction temporelle suivante :

$$f_p(t) = \frac{e^{-\lambda_c t_1} - e^{-\lambda_c t_2}}{\lambda_c}$$

le signal prompt (en coups) s'écrit :

$$S_p = \tau_0 \nu_p \varepsilon_p f_p(t)$$

1.2 Signal des neutrons retardés

Le signal des neutrons retardés [Lyoussi99, Raoux00] s'écrit (en coups) :

$$S_r = \tau_{fis} \varepsilon_r \nu_r \sum_{i=1}^6 \frac{\beta_i}{\lambda_i} [1 - e^{-\lambda_i t_{irr}}] e^{-\lambda_i t_{ref}} [1 - e^{-\lambda_i t_{compt}}] \frac{[(n+1)(1-\omega_i) - (1-\omega_i^{n+1})]}{(1-\omega_i)^2}$$

Dans cette équation (voir annexe 3), τ_{fis} est le taux de fission ou photofission (en (photo)fissions par seconde), ε_r l'efficacité de détection absolue des neutrons retardés, ν_r le nombre moyen de neutrons retardés émis par réaction de (photo)fission, β_i la fraction de neutrons retardés pour le groupe i , λ_i la constante de décroissance radioactive pour le groupe i (en s^{-1}), t_{irr} la durée de l'impulsion (en secondes), t_{ref} le temps de refroidissement (en secondes), t_{compt} le temps de comptage (en secondes), n le nombre de cycles, et avec $\omega_i = e^{-\lambda_i/f}$, f étant la fréquence à laquelle les impulsions sont délivrées par l'accélérateur.

En définissant la fonction temporelle suivante :

$$f_r(t) = \sum_{i=1}^6 \frac{\beta_i}{\lambda_i} [1 - e^{-\lambda_i t_{irr}}] e^{-\lambda_i t_{ref}} [1 - e^{-\lambda_i t_{compt}}] \frac{[(n+1)(1-\omega_i) - (1-\omega_i^{n+1})]}{(1-\omega_i)^2}$$

le signal retardé (en coups) devient :

$$S_r = \tau_{fis} \varepsilon_r \nu_r f_r(t)$$

1.3 Signal des gamma retardés

En considérant deux noyaux, un noyau père et un noyau fils (les temps de demi-vie des précurseurs étant courts si on les compare à ceux des noyaux père et fils), le signal des gamma retardés émis par le noyau fils s'écrit (en coups) [Carrel10] :

$$S(E_\gamma) = \tau_{fis} p_\gamma \varepsilon_\gamma t_{irr} \left\{ Y_i^f \left(\frac{1 - e^{-n\frac{\lambda_f}{f}}}{1 - e^{-\frac{\lambda_f}{f}}} \right) e^{-\lambda_f T_{ref}} (1 - e^{-\lambda_f T_{compt}}) \right. \\ \left. + Y_c^p \frac{\lambda_f}{\lambda_f - \lambda_p} \left[\left(\frac{1 - e^{-n\frac{\lambda_p}{f}}}{1 - e^{-\frac{\lambda_p}{f}}} \right) e^{-\lambda_p T_{ref}} (1 - e^{-\lambda_p T_{compt}}) \right] \right. \\ \left. - Y_c^p \frac{\lambda_p}{\lambda_f - \lambda_p} \left[\left(\frac{1 - e^{-n\frac{\lambda_f}{f}}}{1 - e^{-\frac{\lambda_f}{f}}} \right) e^{-\lambda_f T_{ref}} (1 - e^{-\lambda_f T_{compt}}) \right] \right\}$$

Dans cette équation (voir annexe 4), τ_{fis} est le taux de fission ou photofission (en (photo)fissions par seconde), p_γ la probabilité d'émission du gamma retardé, ε_γ l'efficacité de détection absolue du gamma retardé à l'énergie E_γ , t_{irr} la durée de l'impulsion (en secondes), Y_i^f le taux de production indépendant du noyau fils par (photo)fission, Y_c^p le taux de production cumulé du noyau père par (photo)fission, n le nombre de cycle, λ_f la constante de décroissance radioactive du noyau fils (par seconde), λ_p la constante de décroissance radioactive du noyau père (par seconde), f la fréquence à laquelle les impulsions sont délivrées (en Hz), T_{ref} le temps de refroidissement (en secondes), T_{compt} le temps de comptage (en secondes).

En définissant les deux fonctions temporelles suivantes :

$$f_f = t_{irr} \left(\frac{1 - e^{-n\frac{\lambda_f}{f}}}{1 - e^{-\frac{\lambda_f}{f}}} \right) e^{-\lambda_f T_{ref}} (1 - e^{-\lambda_f T_{compt}}) \\ f_p = t_{irr} \frac{\lambda_f}{\lambda_f - \lambda_p} \left[\left(\frac{1 - e^{-n\frac{\lambda_p}{f}}}{1 - e^{-\frac{\lambda_p}{f}}} \right) e^{-\lambda_p T_{ref}} (1 - e^{-\lambda_p T_{compt}}) \right] \\ - t_{irr} \frac{\lambda_p}{\lambda_f - \lambda_p} \left[\left(\frac{1 - e^{-n\frac{\lambda_f}{f}}}{1 - e^{-\frac{\lambda_f}{f}}} \right) e^{-\lambda_f T_{ref}} (1 - e^{-\lambda_f T_{compt}}) \right]$$

le signal de gamma retardés (en coups) peut être réécrit sous la forme :

$$S(E_\gamma) = \tau_{fis} p_\gamma \varepsilon_\gamma (Y_i^f f_f + Y_c^p f_p)$$

Dans le cas où le temps de demi-vie des noyaux fils est largement supérieur à celui de leurs précurseurs [Carrel11], en notant Y_c^f le taux de production cumulé du noyau fils par (photo)fission, le signal (en coups) devient

$$S(E_\gamma) = \tau_{fis} p_\gamma \varepsilon_\gamma Y_c^f f_f$$

2. Mesure d'interrogation neutronique active

2.1 Dispositif expérimental et protocole

Pour ces différentes campagnes de mesure dédiées à la démonstration de la faisabilité de l'interrogation neutronique active avec un accélérateur d'électrons, l'accélérateur de l'installation SAPHIR était équipé avec une cible de conversion en dénal de 5 mm d'épaisseur, ou avec une cible en tantale (pureté de 99,9%) d'une épaisseur d'1 cm. L'intensité crête du courant d'électrons était de 100 mA et les impulsions d'une durée de 2,5 μ s étaient délivrées à la fréquence de 25 Hz ou 50 Hz. Sauf indication contraire, l'énergie moyenne du spectre des électrons était de 17 MeV. Nous avons utilisé des échantillons d'uranium ou de plutonium certifiés dont les compositions isotopiques ont été vérifiées en utilisant le code IGA [Simon11]. Les caractéristiques des principaux échantillons d'uranium et de plutonium utilisés pour ces mesures sont présentées dans les tableaux 3.1 et 3.2 respectivement. Dans le cadre de ces travaux, les échantillons d'uranium enrichi à 85% en ^{235}U et de plutonium à 94% en ^{239}Pu (échantillon PIDIE [Morel04]) ont été retenus comme échantillons de référence pour leur teneur élevée en matière fissile. Les échantillons ont été interrogés dans une maquette de cellule neutronique (représentée sur la figure 3.1).

Masse totale (g)	Forme chimique	Enrichissement de l'uranium en ^{235}U (%)
5	UO_2	2,79
5	UO_2	5,11
5	UO_2	6,22
8	UO_2	9,55
2	UO_2	85,00
10	métal	93,00

Tableau 3.1 : Principales caractéristiques des échantillons d'uranium utilisés.

Masse totale (mg)	Forme chimique	Fraction massique de ^{239}Pu dans le Pu (%)
291,5	PuO_2	74,55
284,7	PuO_2	74,55
294,1	PuO_2	90,04
293,7	PuO_2	90,04
450,0	PuO_2	94,00

Tableau 3.2 : Principales caractéristiques des échantillons de plutonium utilisés.

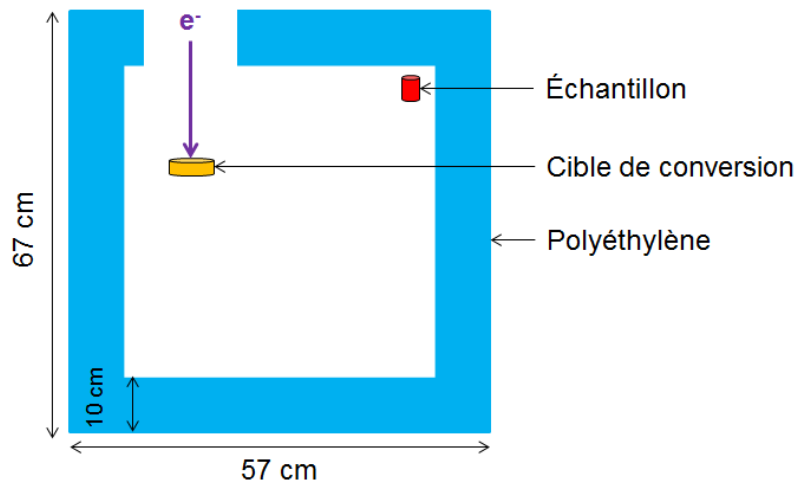


Figure 3.1 : Schéma d'une cellule neutronique basée sur un accélérateur d'électrons.

Dans l'optique d'évaluer les performances de la maquette de cellule neutronique basée sur un accélérateur d'électrons et destinée à réaliser des mesures d'interrogation neutronique active sur des échantillons, un premier critère de performance a été étudié par simulation MCNPX : le taux de fission dans un échantillon d' ^{235}U placé dans la cellule. Nous avons simulé le taux de fission en fonction de l'épaisseur des blocs de polyéthylène constituant la cellule. Nos résultats sont présentés sur la figure 3.2. Il apparaît que le taux de fission atteint sa valeur maximale pour une épaisseur de blocs de près de 9 cm. Notre cellule maquette présentant des parois épaisses de 10 cm, comme indiqué sur la figure 3.1, cette dernière présente des performances intéressantes dans le cas où l'on prévoit de réaliser des mesures de gamma retardés de fission thermique (mesures post-irradiation, voir figure 3.6).

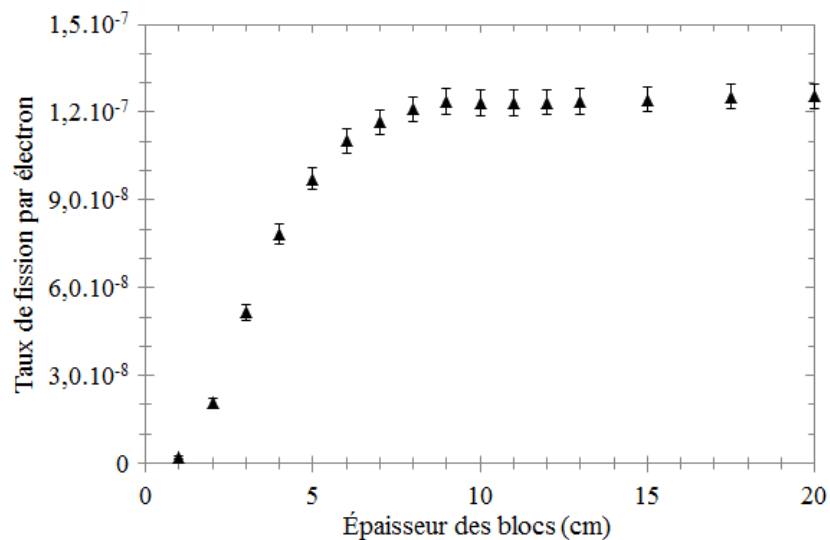


Figure 3.2 : Simulation MCNPX du taux de fission total dans un échantillon d'uranium en fonction de l'épaisseur des blocs de polyéthylène constituant la cellule neutronique.

La figure 3.3 présente la maquette de cellule neutronique réalisée. Deux blocs de détection neutronique ont été positionnés l'un au-dessus de l'autre de chaque côté de la cellule

(épaisseur de parois de la cellule non optimisée pour ce type de mesure). Chaque bloc, constitué de polyéthylène et enrobé de cadmium, comporte trois détecteurs à ^3He (150NH100).



Figure 3.3 : À gauche : maquette de cellule neutronique basée sur un accélérateur d'électrons. À droite : tête de l'accélérateur d'électrons à l'entrée de la cellule.

Nous avons positionné l'échantillon perpendiculairement à l'axe des électrons irradiant la cible de conversion de telle sorte que l'échantillon soit placé hors du champ de photons de haute énergie et limiter ainsi l'impact des réactions parasites de photofission durant la mesure d'interrogation neutronique active. La distance entre l'échantillon irradié et la cible de conversion était d'environ 30 cm. Les neutrons prompts et les neutrons retardés ont été détectés durant les 10 minutes d'irradiation. Les neutrons prompts ont été détectés entre 3 ms et 8 ms après l'impulsion, et les neutrons retardés entre 10 ms et 20 ms après celle-ci. La figure 3.4 superpose les signaux mesurés pour l'échantillon de référence de plutonium, avec et sans cadmium autour de ce dernier durant la mesure d'interrogation. Le cadmium permettant de s'affranchir de la composante thermique du flux de neutrons interrogateurs, nous pouvons voir que l'échantillon a été majoritairement interrogé par des neutrons thermiques durant la mesure d'interrogation neutronique active. À titre d'illustration, la figure 3.5 expose les signaux mesurés pour des échantillons présentant différentes masses d' ^{235}U (139 mg, 311 mg, et 764 mg).

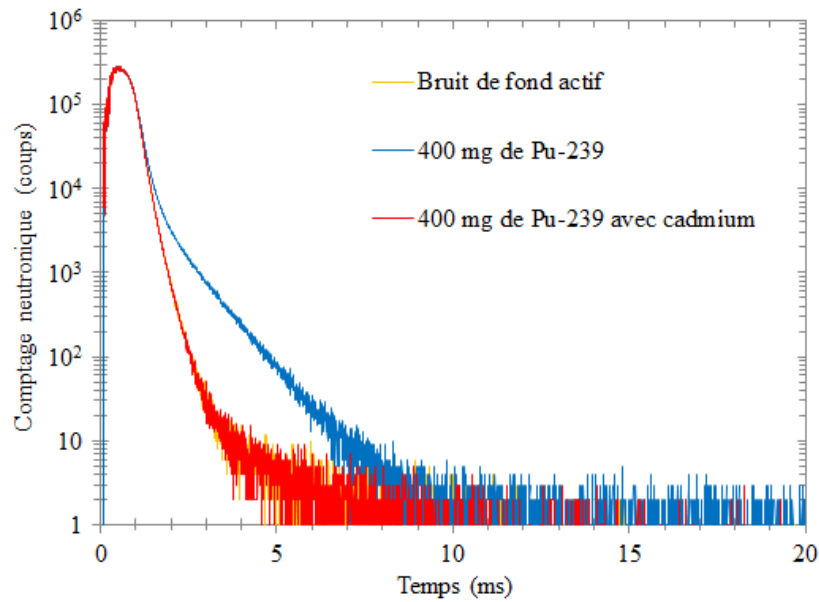


Figure 3.4 : Signaux neutroniques obtenus après 10 minutes d’irradiation de l’échantillon de référence de plutonium, avec et sans cadmium autour de l’échantillon durant l’irradiation.

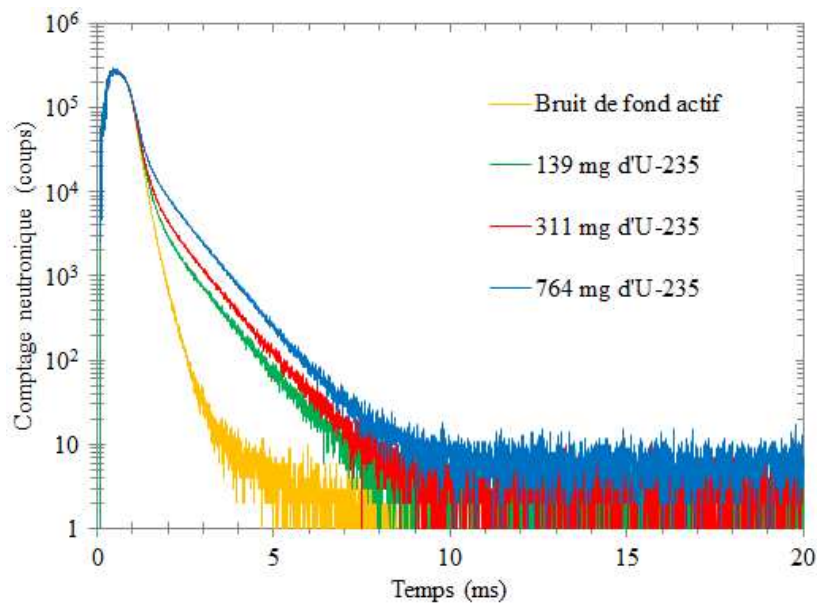


Figure 3.5 : Comparaison de signaux neutroniques obtenus après 10 minutes d’irradiation pour le cas de plusieurs échantillons d’uranium présentant différentes masses d’ ^{235}U .

Après 5 minutes de refroidissement, nous avons retiré l’échantillon de la cellule et placé ce dernier face à un détecteur germanium afin d’acquérir un spectre de gamma retardés comme illustré sur la figure 3.6. Nous avons utilisé un détecteur germanium GEM40P-PLUS HPGe de type p (ORTEC), présentant une efficacité relative de 40%, relié à un spectromètre gamma numérique DSPEC Pro (ORTEC). La durée d’acquisition des spectres de gamma retardés a été de 10 minutes et la distance entre l’échantillon et le détecteur germanium de 15 cm. Pour le cas des échantillons de plutonium, une feuille de cadmium d’une épaisseur

d'un millimètre a été placée entre l'échantillon et le détecteur afin de limiter l'impact du rayonnement gamma à 59 keV émis par ^{241}Am , et ainsi minimiser la valeur du temps mort.

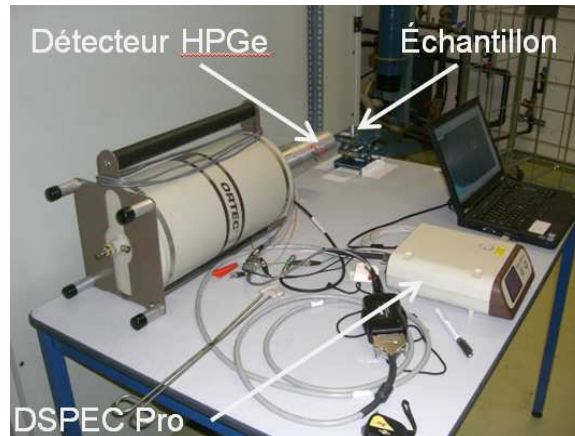


Figure 3.6 : Configuration expérimentale mise en place pour l'acquisition des spectres de gamma retardés avec un détecteur germanium.

La figure 3.7 superpose deux spectres obtenus avec et sans cadmium autour de l'échantillon durant la mesure d'interrogation neutronique pour le cas de l'échantillon d'uranium de référence. Ce résultat, en accord avec la mesure neutronique exposée précédemment, confirme que le flux interrogateur est largement thermique dans la cellule.

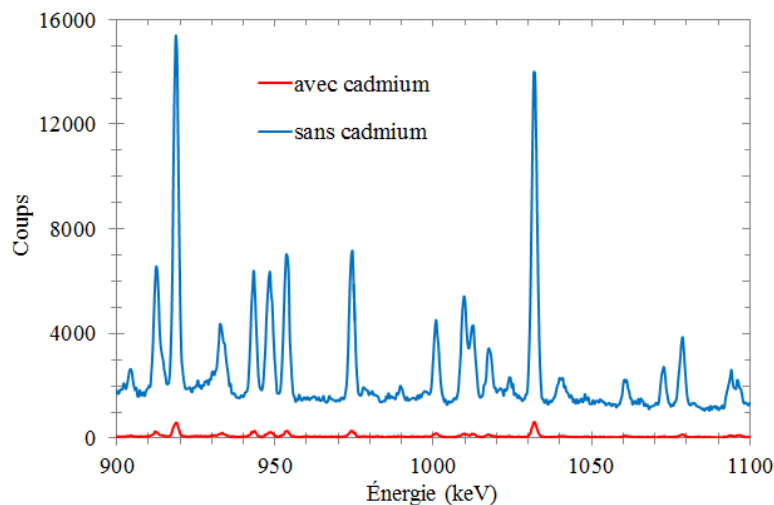


Figure 3.7 : Spectres de gamma retardés obtenus pour l'échantillon de référence d'uranium, avec et sans enveloppe de cadmium autour de l'échantillon durant l'irradiation.

Préalablement à la présentation et à la discussion des résultats expérimentaux qui suivent, nous souhaitons attirer l'attention du lecteur sur les points suivants. Les résultats de comptage neutronique ont été obtenus avec un bloc de détection constitué de trois détecteurs à ^3He . Pour chaque signal neutron, nous avons soustrait les bruits de fond actif et passif de l'installation. Enfin, pour l'ensemble des résultats présentés au sein de ce chapitre et comme

indiqué au chapitre précédent, les barres d'erreurs ne sont représentées que lorsqu'elles sont supérieures à la taille des symboles.

2.2 Signal *versus* durée d'irradiation

Afin d'évaluer la stabilité de notre dispositif au cours du temps, nous avons étudié l'évolution du signal des neutrons prompts et des neutrons retardés en fonction de la durée d'irradiation. Nous avons procédé à différentes irradiations de l'échantillon d'uranium enrichi à 9,55% ou celui de plutonium à 90,04% en ^{239}Pu dont les durées étaient comprises entre 1 min et 18 min. Les figures 3.8 et 3.9 comparent respectivement les résultats obtenus en neutrons prompts et neutrons retardés. Nous pouvons souligner l'excellente linéarité des réponses obtenues.

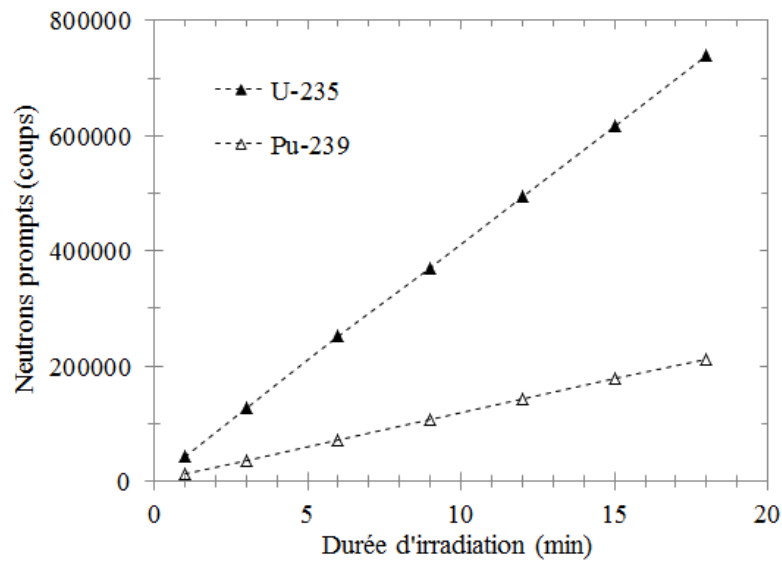


Figure 3.8 : Signal des neutrons prompts *versus* durée d'irradiation.

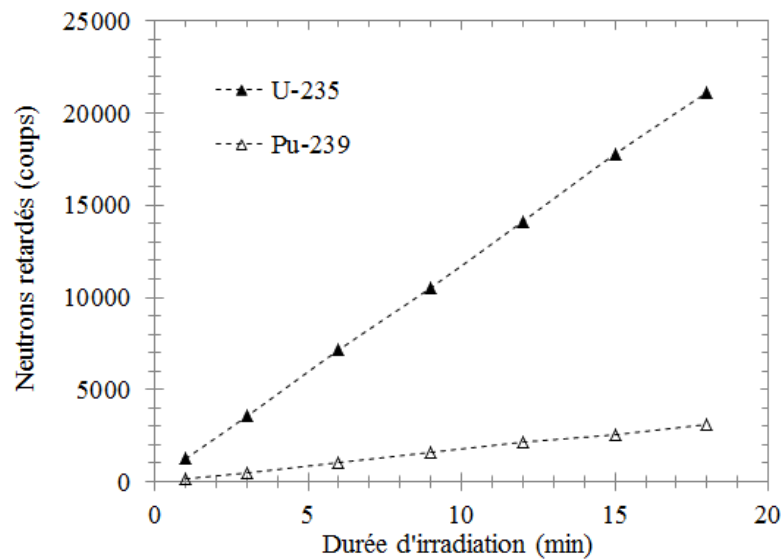


Figure 3.9 : Signal des neutrons retardés *versus* durée d'irradiation.

2.3 Signal des neutrons prompts et retardés

Soulignons tout d'abord que les signaux obtenus en neutrons prompts et en neutrons retardés suite à l'irradiation d'échantillons d'uranium ou de plutonium ont été étudiés durant trois campagnes de mesure (plus d'un mois au total) afin d'affiner nos analyses et interprétations. Les derniers résultats obtenus en neutrons prompts et en neutrons retardés sont présentés sur les figures 3.10 et 3.11 respectivement. Nous avons irradié durant 10 minutes des échantillons d'uranium dont l'enrichissement est compris entre 2,79% et 9,55%, et de différents assemblages d'échantillons de plutonium dont la fraction massique en ^{239}Pu du plutonium est de 74,55% ou 90,04%.

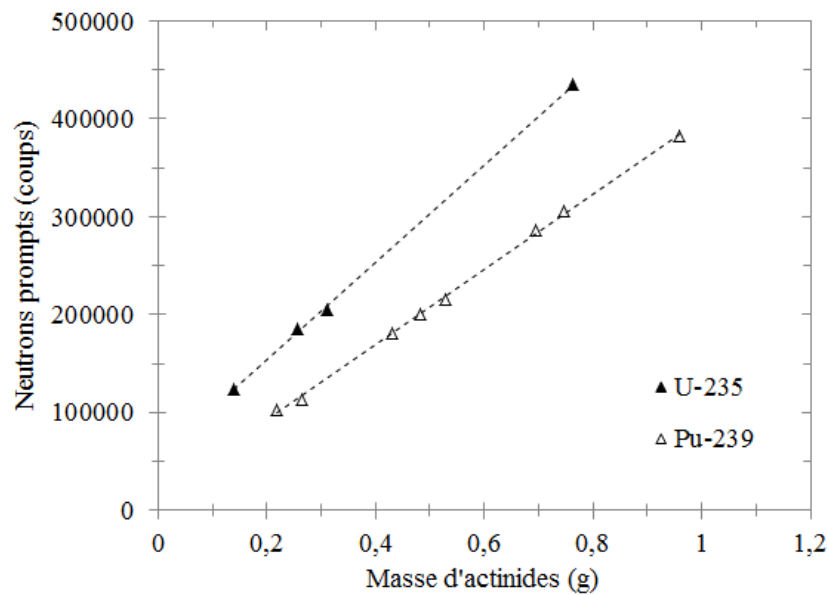


Figure 3.10 : Signal des neutrons prompts *versus* masse d' ^{235}U ou de ^{239}Pu .

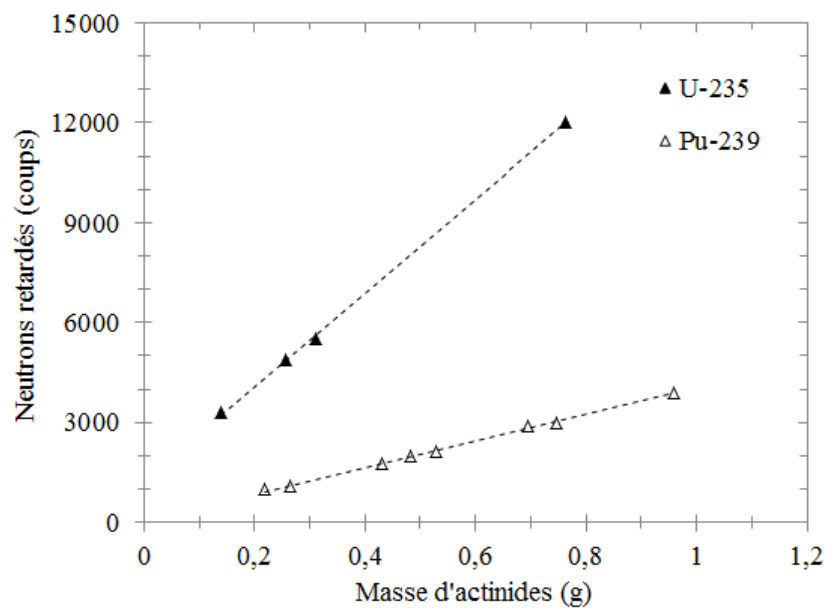


Figure 3.11 : Signal des neutrons retardés *versus* masse d' ^{235}U ou de ^{239}Pu .

De manière générale, les signaux obtenus augmentent linéairement avec la masse d' ^{235}U ou de ^{239}Pu . Plusieurs observations principales peuvent être réalisées. L'effet de non-passage par zéro est significatif pour la droite obtenue pour le cas de l'uranium, et pour une même masse d'actinide, le signal obtenu en neutrons prompts pour l' ^{235}U est plus élevé que celui obtenu pour le ^{239}Pu , ce qui semble en contradiction avec le fait que le nombre moyen de neutrons prompts émis par fission thermique de ^{239}Pu est supérieure à celui de l' ^{235}U et que la section efficace de fission thermique pour le ^{239}Pu est supérieure à celle de l' ^{235}U . Ces différentes observations ont été investiguées. Nous avons d'abord procédé à la comparaison entre mesures réalisées avec et sans enveloppe de cadmium autour des échantillons. Celle-ci a permis de quantifier l'impact des réactions de fission rapide et de photofission mettant en jeu les isotopes fertiles contenus dans les échantillons sur les signaux mesurés. Nous avons trouvé que ces réactions contribuent à hauteur de 0,2% pour le signal prompt et entre 4% et 14% pour le signal des neutrons retardés. Notons que nos simulations MCNPX ont montré que les réactions de fission rapide sont de l'ordre de dix fois plus fréquentes que celles de photofission pour ces mesures.

Nous avons également étudié par simulation l'impact des effets de multiplication ou d'auto-interrogation (réactions de fission rapide sur les isotopes fertiles par des neutrons prompts émis suite aux fissions thermiques sur les isotopes fissiles) sur nos résultats. Nous avons trouvé que ces effets avaient une contribution négligeable dans le cadre de ces mesures. En revanche, nous avons montré par simulation que l'effet d'autoprotection (interrogation par neutrons thermiques limitée à la périphérie de la masse fissile contenue dans l'échantillon) avait un impact significatif sur nos résultats. L'effet d'autoprotection est donc à l'origine de l'*offset* des courbes. Soulignons que l'*offset* est plus faible dans le cas du plutonium car, pour une même masse d'actinide, l'irradiation de plusieurs échantillons juxtaposés plutôt que celle d'un seul échantillon tend à réduire l'importance de cet effet. Nous avons par la suite identifié que l'effet d'auto-absorption (absorption des neutrons de fission dans la matière hydrogénée de l'échantillon) était important pour nos échantillons de plutonium et explique pourquoi le signal prompt obtenu est plus faible pour le plutonium que pour l'uranium. Enfin, pour le cas de nos échantillons de plutonium, précisons que nous avons également étudié par simulation la contribution de la fission thermique sur le ^{241}Pu au signal mesuré. Cet effet contribue à moins de 5% du signal en raison des faibles masses de ^{241}Pu contenues dans ces échantillons.

2.4 Rapport entre signaux neutroniques prompt et retardé

Nous avons souhaité vérifier que les rapports des signaux des neutrons prompts et des neutrons retardés étaient bien caractéristiques de la fission thermique de l' ^{235}U et du ^{239}Pu . La figure 3.12 présente l'évolution des rapports expérimentaux entre les signaux neutroniques prompt et retardé en fonction de la masse d' ^{235}U ou de ^{239}Pu . Les rapports, indépendants de la masse d'actinide, prennent les valeurs suivantes : 37,35 pour l'uranium et 101,65 pour le plutonium. Notons que pour le cas des échantillons de référence, ces rapports prennent respectivement les valeurs de 32,83 et 98,52 pour l'uranium et le plutonium. Ces différentes valeurs, dépendantes de nombreux paramètres expérimentaux comme illustré par les

équations présentées précédemment, ne peuvent être comparées directement avec les valeurs théoriques du nombre moyen de neutrons prompts ou retardés émis par fission thermique sur l' ^{235}U ou le ^{239}Pu .

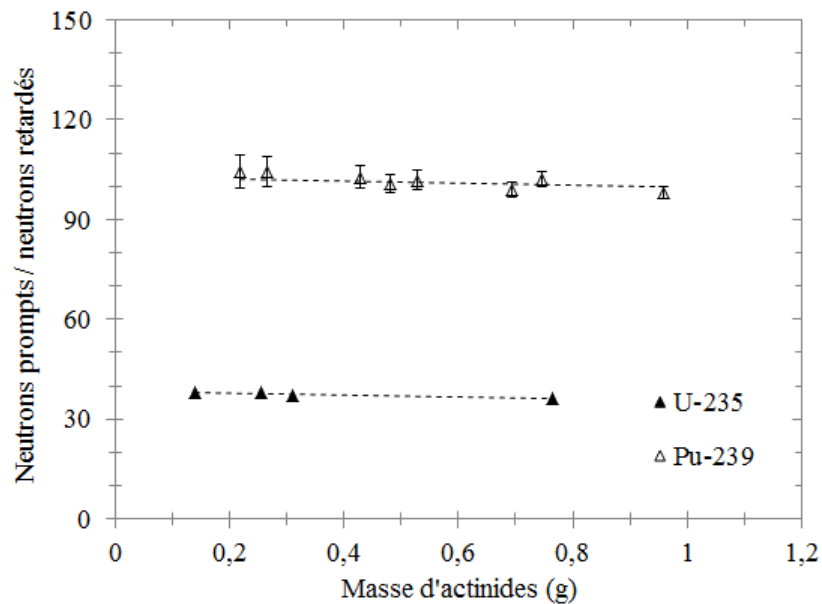


Figure 3.12 : Rapport entre les signaux des neutrons prompts et des neutrons retardés *versus* masse d' ^{235}U ou de ^{239}Pu .

Nous avons entrepris de comparer les valeurs des rapports expérimentaux avec celles obtenues par calcul. Afin de simplifier le taux de fission total dans ces calculs (τ_{fis}), nous avons cherché à relier de manière analytique le taux de fission extrapolé à l'origine (τ_0) de l'expression théorique du signal prompt et le taux de fission total (τ_{fis}) de l'expression théorique du signal retardé. Cette approche, dont aucune trace ne peut être trouvée dans la littérature, semble avoir été utilisée pour la première fois au cours de ce travail de thèse. Nous avons postulé l'approximation suivante :

$$\tau_0 = n \lambda_c t_{irr} \tau_{fis}.$$

Cette approximation peut s'interpréter de la manière suivante : le taux de fission est à sa valeur maximale à l'origine des temps et décroît exponentiellement au cours du temps selon la constante de décroissance λ_c . Plusieurs centaines de microsecondes étant en réalité nécessaires pour que le flux de photoneutrons rapides émis par la cible de conversion se thermalise dans la cellule de mesure, la simplification du taux de fission (τ_{fis}) dans le rapport des signaux prompts et retardés a pour conséquence de surestimer le taux de fission (τ_{fis}) introduit dans l'expression du signal prompt. Nous avons évalué par simulation MCNPX que cette approximation entraîne une surestimation du signal prompt de près de 15% dans le cadre de nos expériences. Connaissant le biais introduit par notre approximation, cette dernière sera retenue dans le cadre de ces calculs. Nous attirons l'attention du lecteur sur le fait qu'une approximation analytique entraînant un biais inférieur nécessiterait une modélisation mathématique complexe de l'évolution du taux de fission au cours du temps.

La valeur de la constante de décroissance du flux de neutrons (λ_c) a été déduite de la décroissance exponentielle du signal prompt mesuré. Les efficacités de détection absolues des neutrons prompts et des neutrons retardés (ε_p et ε_r) ont été mesurées à l'aide de sources de ^{252}Cf et d'AmLi. Les nombres moyens de neutrons prompts émis par fission thermique sur ^{235}U et le ^{239}Pu ont été extraits de [ENDF/B-VII.1] (2,42 et 2,87 respectivement) tandis que les paramètres de neutrons retardés sont extraits de la référence [Waldo81]. Finalement, nos calculs ont abouti aux résultats suivants : 31,87 pour ^{235}U et 98,54 pour le ^{239}Pu . Les rapports obtenus expérimentalement et par calcul sont comparés dans le tableau 3.3 (incluant un facteur de correction sur le biais introduit par notre approximation). Nous y indiquons les rapports obtenus pour les deux échantillons de référence, et avons réalisé la moyenne des rapports obtenus pour les autres échantillons d'uranium et de plutonium. Chaque comparaison est présentée deux fois : avec et sans correction de la part de fission rapide et de photofission sur les rapports expérimentaux (correction obtenue par comparaison des mesures réalisées avec et sans cadmium autour des échantillons). Les rapports déterminés par calcul ne tiennent pas compte de ces deux contributions ou de la part négligeable de signal due aux effets d'auto-interrogation. L'incertitude statistique à un sigma sur les valeurs de ces rapports est inférieure à 4%.

	Sans correction	Avec correction
Échantillons d'uranium	1,02	1,09
Échantillon d'uranium de référence	0,90	0,97
Échantillons de plutonium	0,90	-
Échantillon de plutonium de référence	0,87	0,90

Tableau 3.3 : Rapports entre mesure et calcul des rapports des signaux de neutrons prompts et de neutrons retardés, avec et sans correction de la part de fission rapide et de photofission dans les rapports expérimentaux.

Les rapports entre mesure et calcul des rapports des signaux prompts et retardés présentent un accord satisfaisant. La prise en compte de la correction sur les effets de la fission rapide et de la photofission améliore l'accord entre expérience et calcul pour le cas des échantillons de référence. Les valeurs des efficacités de détection utilisées dans nos calculs ayant été déterminées par des mesures réalisées avec des sources ponctuelles, un facteur de correction tenant compte des caractéristiques des échantillons pourrait potentiellement permettre d'affiner l'écart entre mesure et calcul. Finalement, ces résultats permettent d'obtenir une bonne confiance dans le fait que les échantillons sont majoritairement interrogés par des photoneutrons thermalisés dans la cellule.

2.5 Détection des gamma retardés

Nous nous sommes intéressés à quatre pics de gamma retardés émis par différents produits de fission: ^{89}Rb (1031,9 keV), ^{94}Y (918,7 keV), ^{131}Sb (943,4 keV), et ^{138}Xe (1768,3 keV). Les tableaux 3.4 et 3.5 rassemblent respectivement les aires nettes des pics de gamma retardés étudiés obtenus avec et sans cadmium autour d'un échantillon d'uranium métal de 10 grammes enrichi à 93% en ^{235}U , et autour de l'échantillon d'uranium de référence (mesures réalisées pour une énergie d'électrons de 15 MeV). Ces résultats montrent que ces échantillons ont été interrogés à près de 95% par des neutrons thermiques. Des simulations MCNPX complémentaires ont permis de montrer que la fission rapide était responsable de près de 4,5% de l'interrogation et la photofission de 0,5%. Ces résultats montrent une nouvelle fois que le flux de neutrons interrogateurs n'est que faiblement contaminé par des photons parasites de haute énergie.

Produit de fission	Énergie du photon gamma (keV)	$^{235}\text{U} + \text{Cd}$	^{235}U	$\frac{^{235}\text{U} + \text{Cd}}{^{235}\text{U}}$
^{94}Y	918,7	2412 ± 74	45061 ± 380	5%
^{131}Sb	943,4	940 ± 53	14541 ± 267	6%
^{89}Rb	1031,9	2633 ± 81	45729 ± 408	6%
^{138}Xe	1768,3	587 ± 57	10605 ± 298	6%

Tableau 3.4 : Aires nettes extraites d'un spectre de gamma retardés obtenu pour un échantillon d'uranium de dix grammes enrichi à 93%.

Produit de fission	Énergie du photon gamma (keV)	$^{235}\text{U} + \text{Cd}$	^{235}U	$\frac{^{235}\text{U} + \text{Cd}}{^{235}\text{U}}$
^{94}Y	918,7	380 ± 28	7102 ± 157	5%
^{131}Sb	943,4	121 ± 21	2353 ± 86	5%
^{89}Rb	1031,9	392 ± 32	7596 ± 130	5%
^{138}Xe	1768,3	103 ± 22	2075 ± 96	5%

Tableau 3.5 : Aires nettes extraites d'un spectre de gamma retardés obtenu pour l'échantillon de référence d'uranium.

Nous avons déterminé l'évolution de l'aire nette des différents pics étudiés en fonction de la masse d' ^{235}U . La figure 3.13 expose nos résultats. De manière générale, le signal augmente linéairement avec la masse d' ^{235}U comme pour la mesure des neutrons prompts et des neutrons retardés. Cependant, les quatre droites présentent des coefficients directeurs

différents. Cela provient du fait que pour chaque pic gamma étudié, bien que le phénomène d'autoprotection ayant lieu pendant la phase d'interrogation de l'échantillon soit le même, les valeurs des paramètres suivants diffèrent : les taux de production cumulés de fission thermique sur l' ^{235}U des différents produits de fission, les probabilités d'émission des gamma retardés, et leurs efficacités de détection absolues.

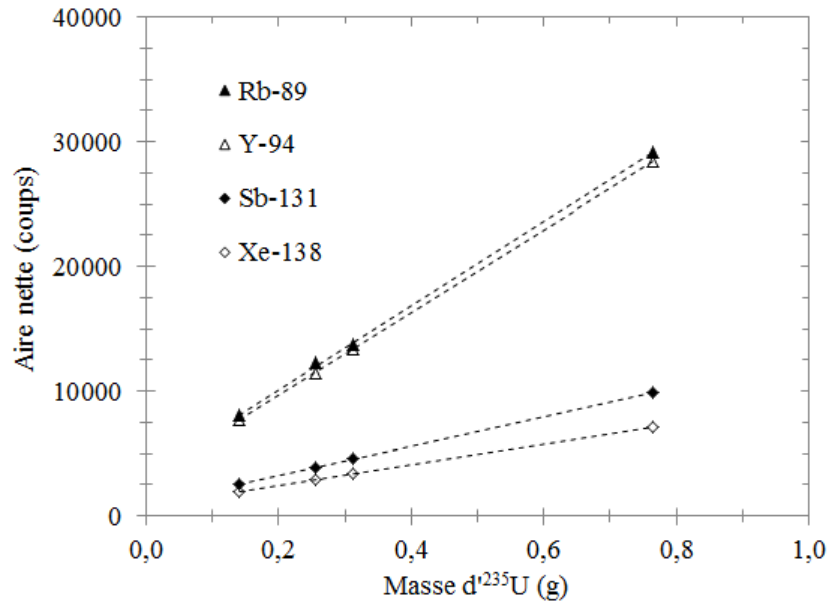


Figure 3.13 : Signal des gamma retardés versus masse d' ^{235}U pour les quatre produits de fission étudiés.

Une analyse fine des signaux de gamma retardés permet d'obtenir des informations complémentaires à celles obtenues précédemment grâce à la détection des neutrons prompts et des neutrons retardés. Nous avons ainsi cherché à montrer que les signaux de gamma retardés mesurés étaient caractéristiques de la fission thermique. Nous nous sommes notamment intéressés au rapport des coefficients directeurs des droites obtenues pour l' ^{94}Y et l' ^{131}Sb . Le temps de demi-vie des noyaux fils étant largement supérieur à celui de leurs précurseurs, l'analyse de l'aire nette des pics correspond aux taux de production cumulés des noyaux fils [Carrel11]. En réalisant l'hypothèse selon laquelle l'efficacité de détection absolue est la même pour ces deux gamma retardés proches en énergie (918,7 keV et 943,4 keV), l'expression théorique du rapport entre les coefficients directeurs obtenus pour les émetteurs ^{94}Y et ^{131}Sb est donné par l'équation suivante :

$$R_{\frac{94\text{Y}}{131\text{Sb}}} = \frac{p_{\gamma,94\text{Y}} Y_{c,94\text{Y}}^f f_{f,94\text{Y}}}{p_{\gamma,131\text{Sb}} Y_{c,131\text{Sb}}^f f_{f,131\text{Sb}}}$$

Les valeurs de probabilités d'émission pour les deux photons gamma d'intérêt ($p_{\gamma,94\text{Y}}$ et $p_{\gamma,131\text{Sb}}$) ont été extraites de la bibliothèque de données nucléaires JEFF-3.1.1. Nous avons pris les valeurs des taux de production cumulés des noyaux fils par fission thermique ($Y_{c,94\text{Y}}^f$ et $Y_{c,131\text{Sb}}^f$) indiquées dans la référence [Carrel11]. Les fonctions temporelles ($f_{f,94\text{Y}}$ et $f_{f,131\text{Sb}}$)

ont été calculées en prenant en compte les temps de demi-vie pour ^{94}Y et ^{131}Sb tirées de l'évaluation Nubase 2003. Finalement, la valeur obtenue pour le rapport théorique est de 2,810. Le rapport entre les coefficients directeurs des droites de nos résultats expérimentaux obtenus pour ^{94}Y et ^{131}Sb étant de 2,807, mesure et calcul présentent un excellent accord. Ces résultats tendent à montrer que le signal mesuré provient bien de la fission thermique de ^{235}U . Ces résultats permettent de renforcer nos conclusions précédentes, tirées de l'analyse des signaux des neutrons prompts et des neutrons retardés, et qui indiquaient que les échantillons étaient majoritairement interrogés par des photoneutrons thermalisés dans notre cellule de mesure.

3. Association de résultats de mesures d'interrogation neutronique et photonique actives

Nous avons montré qu'un accélérateur d'électrons offre des performances intéressantes en termes d'interrogation neutronique active. Nous cherchons à présent à montrer le potentiel d'un tel accélérateur à extraire plus d'informations sur un colis que celles apportées séparément par les techniques d'interrogation neutronique ou photonique actives. Les premiers résultats obtenus par association de l'interrogation neutronique et photonique active semblent avoir été obtenus dans le cadre de cette thèse. Les neutrons thermiques interrogent les isotopes fissiles et les photons de haute énergie interrogent les isotopes fissiles et fertiles. Nous nous sommes proposé d'associer les résultats des mesures d'interrogation neutronique et photonique actives pour déterminer l'enrichissement d'un échantillon d'uranium.

3.1 Dispositif expérimental et protocole

Des mesures d'interrogation photonique active ont été effectuées pour le cas des trois échantillons d'uranium de mêmes masses totales de cinq grammes. Cette fois-ci, l'échantillon irradié a été placé face à la cible de conversion de l'accélérateur et irradié durant 10 min en l'absence de cellule neutronique, comme le montre la figure 3.14. Les neutrons retardés de photofission ont été détectés durant l'irradiation, entre les impulsions du LINAC (comptage « interpulses »), par les mêmes blocs de détection que ceux utilisés pour les mesures d'interrogation neutronique active. Deux blocs ont été positionnés l'un au-dessus de l'autre des deux côtés de l'échantillon. La distance entre les blocs et l'échantillon était de 62 cm tandis que la distance entre la cible et l'échantillon était de 56 cm. Soulignons que, comme précédemment, les comptages neutroniques présentés par la suite ont été obtenus avec un seul des quatre blocs de détection contenant trois détecteurs à ^3He et les bruits de fond neutroniques actif et passif ont été soustraits afin d'obtenir le signal net. Suite à l'irradiation et au respect d'un temps de refroidissement de 5 min, l'échantillon a été placé face au détecteur germanium (comptage post-irradiation de 10 min). Le même protocole expérimental a été utilisé pour l'acquisition des spectres de gamma retardés en photofission et en fission thermique.

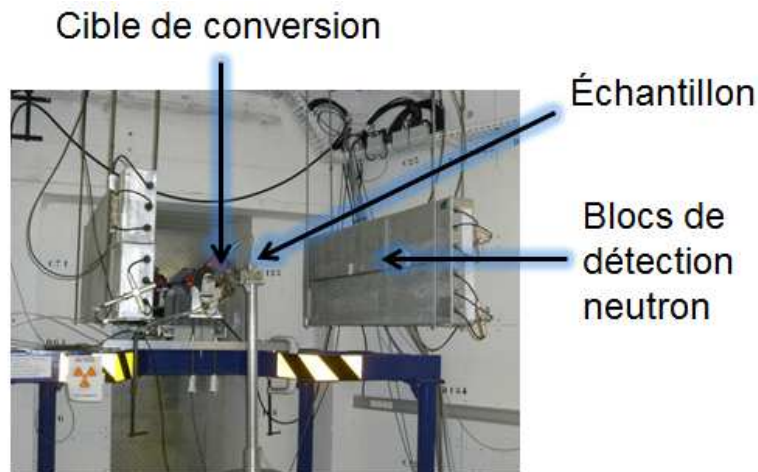


Figure 3.14 : Configuration expérimentale mise en place lors de la mesure d'interrogation photonique active.

3.2 Neutrons prompts ou retardés de fission thermique et de photofission

Nous avons étudié l'évolution du rapport des nombres de neutrons prompts de fission thermique et de neutrons retardés de photofission détectés, en fonction de l'enrichissement en ^{235}U de l'uranium. La figure 3.15 présente les résultats obtenus pour trois échantillons de même masse totale de 5 grammes. Nous pouvons voir que le rapport augmente avec l'enrichissement comme prévu par la théorie. Des résultats ont été obtenus en s'intéressant au rapport entre les nombres de neutrons retardés de fission thermique et de photofission. La figure 3.16 présente les résultats obtenus pour les trois mêmes échantillons. Ces différents résultats tendent à montrer la faisabilité de la mesure de l'enrichissement de l'uranium à l'aide de cette approche.

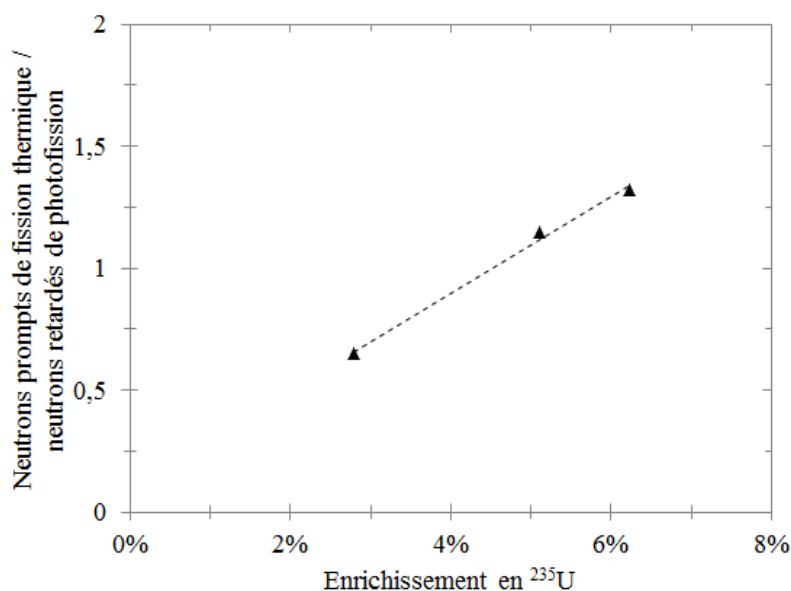


Figure 3.15 : Rapports entre le signal des neutrons prompts de fission thermique et le signal des neutrons retardés de photofission en fonction de l'enrichissement de l'uranium.

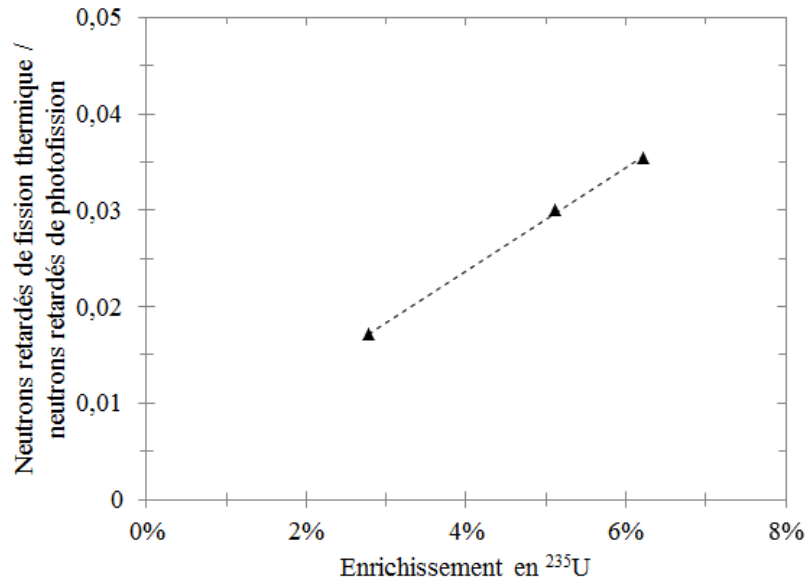


Figure 3.16 : Rapports entre le signal des neutrons retardés de fission thermique et le signal des neutrons retardés de photofission en fonction de l'enrichissement de l'uranium.

3.3 Gamma retardés de fission thermique et de photofission

Afin de confirmer les résultats précédents, nous avons étudié l'évolution entre les rapports des aires nettes correspondantes à l'émission des différents gamma retardés en fission thermique et en photofission, en fonction de l'enrichissement de l'uranium. La figure 3.17 présente ces résultats. Les rapports augmentent linéairement avec l'enrichissement. Cependant, les droites ne se superposent pas et présentent différentes pentes et ordonnées à l'origine en raison des différences en termes de taux de production, de probabilités d'émission et d'efficacités de détection pour ces différents gamma retardés.

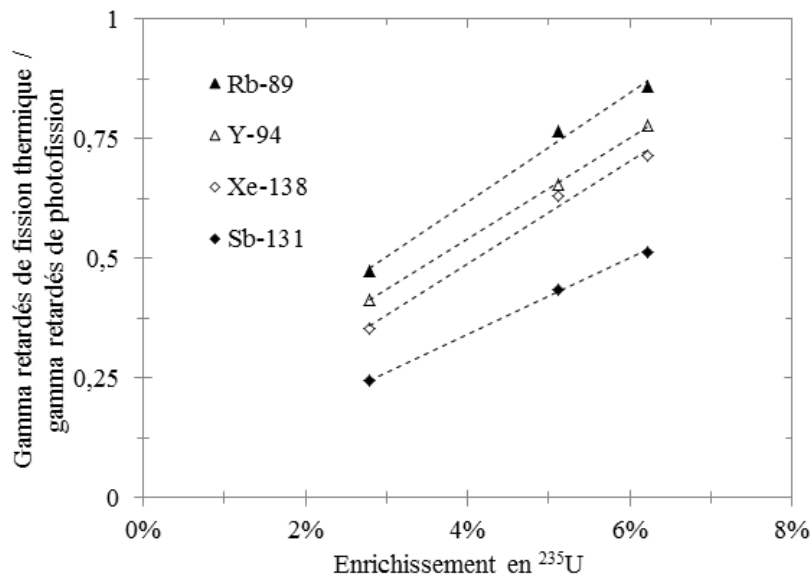


Figure 3.17 : Rapports entre le signal des gamma retardés de fission thermique et le signal des gamma retardés de photofission en fonction de l'enrichissement de l'uranium.

4. Conclusions

Ce chapitre avait pour objectif d'investiguer le potentiel d'un accélérateur d'électrons à être utilisé en tant qu'outil polyvalent de caractérisation des colis de déchets radioactifs. Nous avons réalisé des mesures d'interrogation neutronique active sur des échantillons d'uranium et de plutonium avec une maquette de cellule neutronique basée sur l'accélérateur d'électrons de l'installation SAPHIR. Différents types de signaux ont été analysés. Nous nous sommes intéressés à la détection de neutrons prompts et retardés, et à la détection des gamma retardés émis par différents produits de fission. Les effets d'autoprotection et d'auto-absorption ont un impact important sur nos échantillons et doivent être pris en compte afin d'interpréter les signaux mesurés. Nous avons calculé de manière théorique les rapports entre signaux prompts et retardés de fission thermique. Nos résultats présentent un bon accord avec les valeurs expérimentales. Les différents types de mesures que nous avons réalisées permettent de conclure sur le fait que les échantillons sont interrogés par un flux de neutrons majoritairement thermique au sein de la cellule.

Nous avons également interprété de façon combinée des résultats de mesures non simultanées d'interrogation neutronique et photonique active utilisant le même accélérateur d'électrons. Cette méthode, que nous avons appliquée avec succès à la mesure de l'enrichissement de l'uranium, ouvre de nouvelles perspectives pour la recherche sur la caractérisation des colis de déchets radioactifs. Nous avons déduit les masses limites de détection en interrogation neutronique active à partir des signaux de neutrons prompts. Près de 7 mg d' ^{235}U et 11 mg de ^{239}Pu peuvent être détectés en 10 min (voir annexe 5). Une cellule de mesure neutronique optimisée, offrant notamment la possibilité de détecter les neutrons prompts de fission thermique plus précocement, permettrait de repousser davantage les limites de détection en interrogation neutronique active. La conception d'une cellule neutronique optimisée et adaptée à l'irradiation de fûts maquettes de 220 L composés de différentes matrices fera l'objet du dernier chapitre de cette thèse, ce qui va nous permettre d'approfondir l'évaluation des performances de notre méthode.

CHAPITRE 4 : INTERROGATION NEUTRONIQUE ACTIVE :

APPLICATION SUR COLIS

1. Conception d'une cellule neutronique optimisée et basée sur un accélérateur d'électrons

Le cœur de ce travail de thèse repose sur la conception par simulation d'une cellule d'interrogation neutronique basée sur un accélérateur d'électrons, et l'évaluation expérimentale de la faisabilité de la mesure d'interrogation neutronique active avec un tel accélérateur sur des colis maquettes constitués de différentes matrices. Nous avons entrepris de dimensionner une cellule de mesure dont la cavité interne permettrait d'accueillir un fût de 220 L. En raison de contraintes d'usinage, nous avons envisagé une cellule présentant une cavité interne en forme de parallélépipède rectangle. Nous nous sommes également attachés à concevoir une cellule permettant de réaliser successivement une mesure d'interrogation neutronique active et une mesure d'interrogation photonique active, ces deux mesures étant réalisées avec un système de détection neutron identique. Afin que seule la face inférieure de la cellule — sur laquelle repose le fût — soit présente lors de la réalisation de la mesure d'interrogation photonique active, nous avons entrepris de concevoir une cellule dont les parties latérales et supérieures soient amovibles. Ainsi, les deux blocs de détection neutronique sont directement plaqués contre la cellule afin de faciliter le passage entre les configurations des mesures d'interrogation neutronique et photonique actives. En vue de limiter les coûts de fabrication de la future cellule, nous choisirons de dimensionner cette dernière à partir d'un matériau peu onéreux. Cependant, une configuration plus complexe aurait pu être envisagée pour réaliser une cellule à vocation industrielle.

L'ensemble de nos simulations ont été réalisées à l'aide du code de calcul Monte-Carlo MCNPX. Les performances de la cellule ont été évaluées à partir de six paramètres :

- le taux de fission dans un échantillon de matière fissile dans la cellule ;
- le temps de demi-vie des photoneutrons interrogateurs dans la cellule ;
- le temps de demi-vie des neutrons rapides (photoneutrons interrogateurs et neutrons prompts de fission thermique) dans les blocs de détection ;
- l'efficacité de détection des neutrons prompts de fission thermique ;
- l'efficacité de détection des neutrons retardés de fission thermique ;
- l'efficacité de détection des neutrons retardés de photofission.

Le temps de demi-vie des neutrons rapides dans les blocs de détection doit être le plus bref possible afin de permettre la détection des neutrons prompts de fission thermique le plus tôt possible après la disparition du bruit des photoneutrons interrogateurs, tandis que le temps de demi-vie des photoneutrons interrogateurs dans la cellule doit être le plus élevé afin d'entraîner des réactions de fission thermique sur la période de temps la plus longue possible. Sauf indication contraire, nos simulations sont réalisées avec une source neutronique isotrope dont le spectre en énergie et l'intensité moyenne d'émission correspondent à ceux des

photoneutrons émis par une cible de tantale d'1 cm d'épaisseur irradiée par des électrons de 17 MeV. Notre étude de conception est structurée en trois parties : la cavité interne de la cellule ; la source de photoneutrons ; et les blocs de détection neutroniques.

1.1 Enceinte thermalisante

Nous avons cherché quel était le matériau le plus adapté pour la réalisation de notre cellule. L'épaisseur des parois de l'enceinte et les dimensions de la cavité interne de la cellule ont également été déterminées.

1.1.1 Choix du matériau

Deux matériaux sont généralement utilisés au sein d'une cellule d'interrogation neutronique active [Favalli09, Mariani03] : le polyéthylène et le graphite. Habituellement, la cavité interne est constituée de graphite, pour thermaliser les neutrons interrogateurs en limitant leur absorption (maximisation du temps de demi-vie des neutrons interrogateurs), et d'une couche externe de polyéthylène, à des fins de radioprotection et pour limiter le bruit de sources neutroniques extérieures ou le retour des neutrons diffusés dans l'environnement. Afin de comparer les performances d'une cellule constituée alternativement de l'un ou de l'autre de ces deux matériaux, nous avons simulé le taux de fission total au sein d'un échantillon d'uranium enrichi à 100% en ^{235}U disposé dans la cellule pour différentes épaisseurs des parois de l'enceinte. Nous avons considéré une épaisseur allant d'un centimètre à un mètre. La figure 4.1 montre les résultats obtenus. Les incertitudes statistiques à un sigma sont inférieures à 1%. Pour une cellule en polyéthylène, le taux de fission augmente avec l'épaisseur des parois de l'enceinte jusqu'à atteindre un seuil pour 10 cm d'épaisseur environ. En revanche, le graphite permet d'atteindre un taux de fission plus élevé mais requiert plusieurs dizaines de centimètres pour cela. Des simulations complémentaires ont montré que l'évolution du taux de fission dans l'échantillon en fonction de l'épaisseur des parois de la cellule est liée à celle du temps de demi-vie des neutrons interrogateurs. D'après la figure 4.1, à titre d'exemple, une cellule en graphite possédant des parois de 40 cm d'épaisseur permet d'atteindre un taux de fission trois fois supérieur par rapport à celui obtenu à l'aide d'une cellule en polyéthylène dont l'épaisseur des parois est de 10 cm. Cependant, pour de telles dimensions, la masse de la cellule en graphite est plus de douze fois supérieure par rapport à celle de la cellule en polyéthylène. Afin de limiter la masse de la cellule en raison de contraintes d'implémentation dans le hall d'irradiation de l'installation SAPHIR et compte tenu du fait que l'approvisionnement de graphite de qualité nucléaire (faible taux d'impuretés dans le graphite, notamment d'uranium) est complexe et coûteuse, notre choix se porte donc sur une cellule en polyéthylène pour le dimensionnement du dispositif expérimental. Pour une cellule de performances optimales, à des fins industrielles par exemple, une cavité de graphite entourée de polyéthylène pourrait être envisagée.

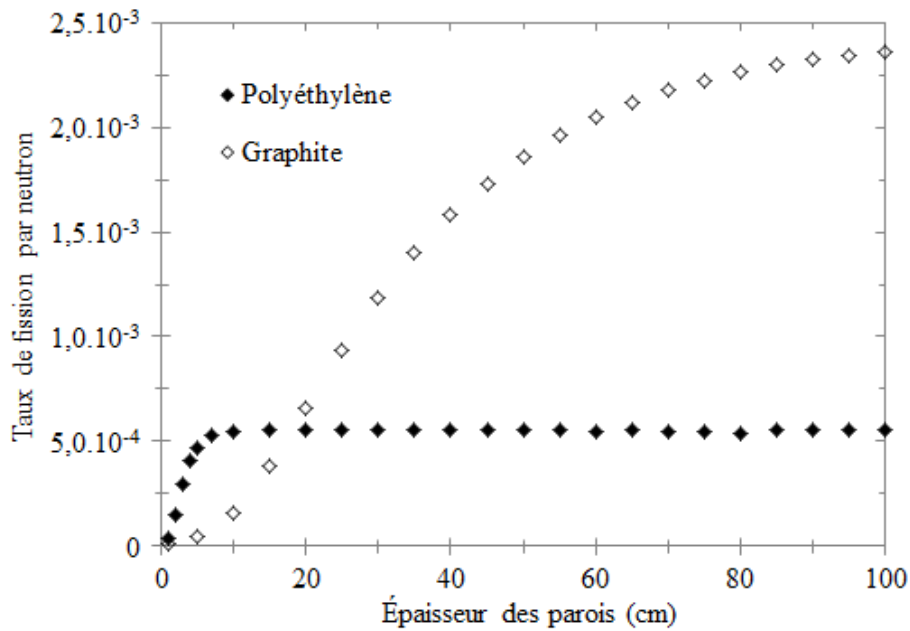


Figure 4.1 : Évolution du taux de fission pour un échantillon d'²³⁵U dans une cellule en polyéthylène ou en graphite pour différentes épaisseurs des parois de la cellule.

1.1.2 Volume de la cavité interne

Le volume de la cavité interne de la cellule doit permettre d'y placer un colis maquette de 220 L. Ce dernier, réalisé en acier d'un millimètre d'épaisseur, possède un diamètre de 60 cm et une hauteur de 82 cm. De plus, la cavité interne doit être dimensionnée de manière à pouvoir placer le fût hors du champ de photons de haute énergie délivré par l'accélérateur. Afin d'ajuster les dimensions de la cavité interne de la cellule, nous avons étudié l'impact du volume de la cavité sur le taux de fission dans un échantillon de matière fissile et sur le temps de demi-vie des neutrons interrogateurs. Ce dernier paramètre a été déterminé à partir d'un calcul de taux de réaction (n, p) dans un détecteur ³He simulé dans l'enceinte et d'une carte temps (carte T dans MCNPX). Nous avons ainsi montré par simulation que le temps de demi-vie des photoneutrons interrogateurs augmente avec le volume de la cavité interne tandis que le taux de fission diminue (résultats non présentés). Un espace de 5 cm entre le fût et les cinq faces de la cellule — du côté où est placé ce dernier — constitue un compromis satisfaisant. Les dimensions de la cavité interne que nous proposons sont les suivantes : 70 cm de profondeur, 90 cm de largeur, et 92 cm de hauteur. La figure 4.2 propose une illustration de la cellule.

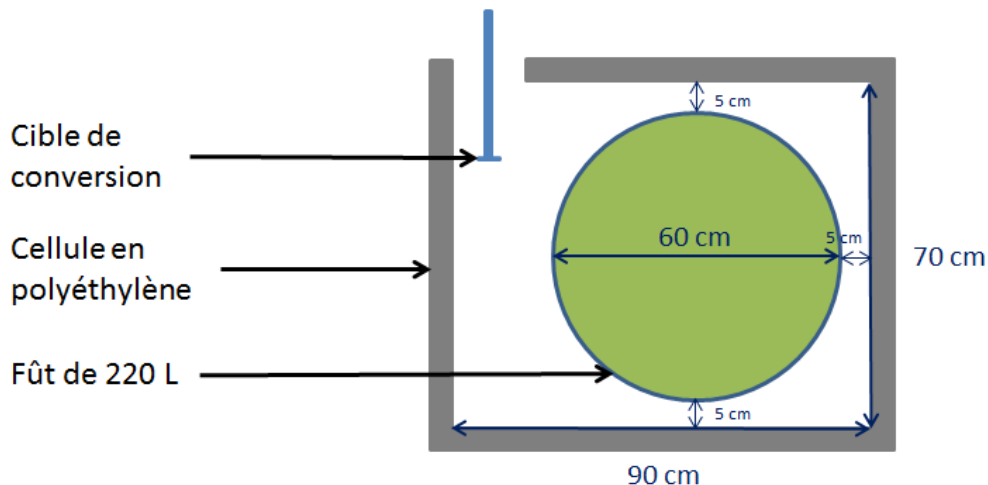


Figure 4.2 : Vue en coupe de la cellule neutronique dimensionnée pour des colis de 220 L.

1.1.3 Épaisseur des parois

Nous avons montré précédemment que le taux de fission dans la cellule augmente avec l'épaisseur des parois en polyéthylène jusqu'à atteindre un seuil. Cependant, les blocs de détection neutronique étant plaqués contre l'extérieur de la cellule, l'épaisseur des parois de la cellule doit être choisie de manière à offrir un compromis satisfaisant entre taux de fission et efficacité de détection des neutrons prompts et des neutrons retardés de fission thermique. La sensibilité de la méthode de mesure est proportionnelle au produit de ces deux grandeurs. Nous avons considéré trois cas de figure : cellule sans fût ; cellule avec fût contenant une matrice homogène en fer ; cellule avec fût contenant une matrice homogène en PVC (polychlorure de vinyle de formule chimique brute C_2H_3Cl). Pour chaque matrice, les simulations ont été réalisées pour deux masses volumiques : $0,2 \text{ g/cm}^3$ et $0,5 \text{ g/cm}^3$. L'échantillon d' ^{235}U a été simulé au centre du fût ou au centre de l'emplacement de celui-ci dans le cas où ce dernier est absent. Il est important de noter que cet emplacement de l'échantillon correspond souvent au cas le plus pénalisant en termes de sensibilité. Pour l'ensemble de ces simulations, 35 cm séparent le centre de l'échantillon et la face avant du mur latéral le plus proche de la cellule. Nous avons considéré des blocs de détection à disposition sur l'installation SAPHIR qui sont constitués de cinq détecteurs à ^3He d'un mètre de long à une pression de 4 bars et placés dans du polyéthylène enrobé de cadmium. Nous avons simulé l'efficacité de détection pour les neutrons prompts et retardés de fission thermique en fonction de l'épaisseur des parois en polyéthylène de la cellule et avons effectué le produit entre le taux de fission dans l'échantillon et l'efficacité de détection neutronique pour chaque épaisseur de polyéthylène. La figure 4.3 montre les résultats obtenus en configuration cellule sans fût tandis que les figures 4.4 et 4.5 et les figures 4.6 et 4.7 présentent respectivement ces mêmes résultats obtenus en présence d'un fût contenant une matrice en fer ou en PVC, pour les deux densités volumiques étudiées. Les incertitudes statistiques relatives à un sigma sont inférieures à 1%.

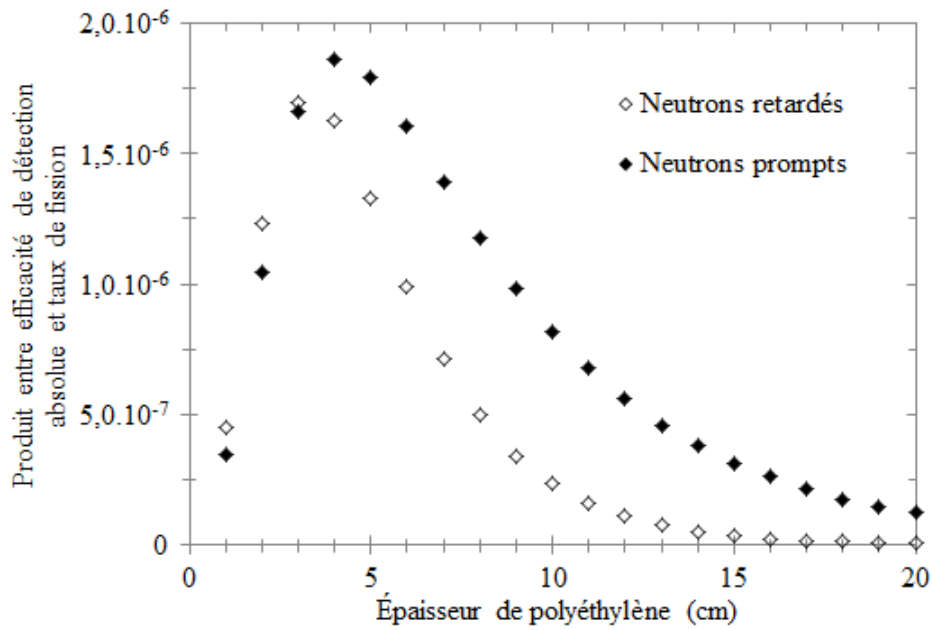


Figure 4.3 : Produit du taux de fission et des efficacités de détection, configuration sans fût.

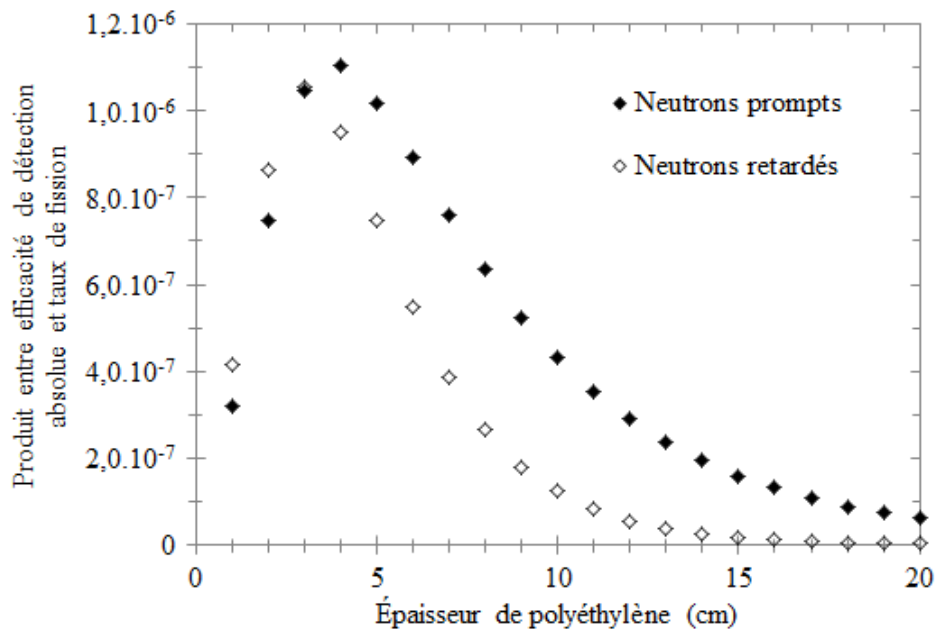


Figure 4.4 : Produit du taux de fission et des efficacités de détection, fût contenant une matrice en fer de 0,2 g/cm³.

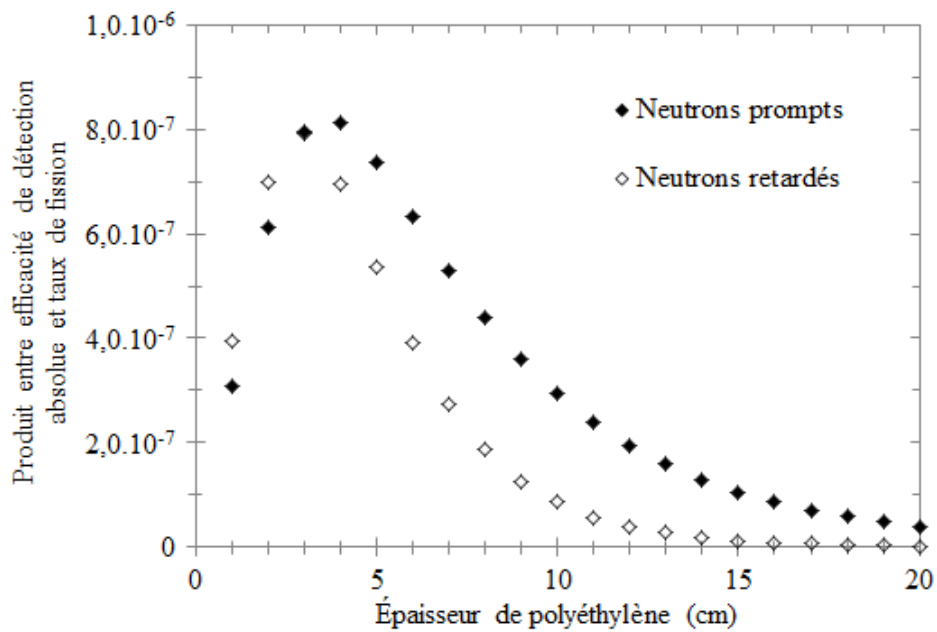


Figure 4.5 : Produit du taux de fission et des efficacités de détection, fût contenant une matrice en fer de $0,5 \text{ g/cm}^3$.

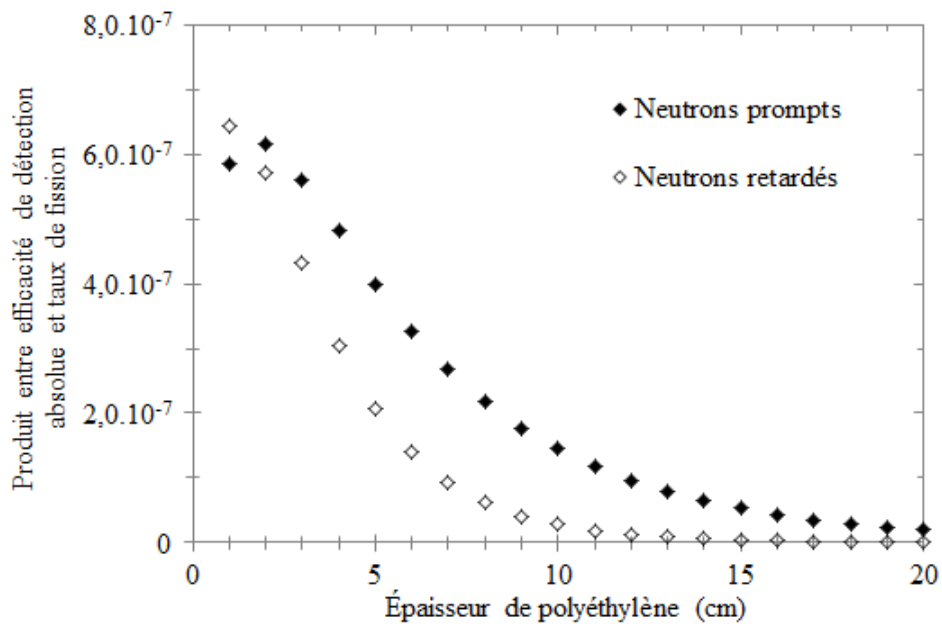


Figure 4.6 : Produit du taux de fission et des efficacités de détection, fût contenant une matrice en PVC de $0,2 \text{ g/cm}^3$.

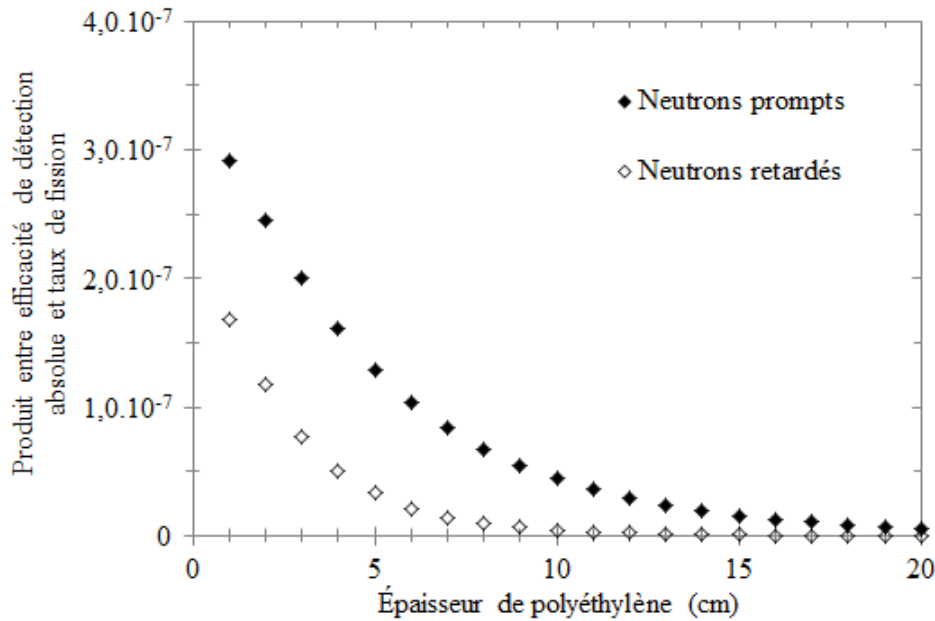


Figure 4.7 : Produit du taux de fission et des efficacités de détection, fût contenant une matrice en PVC de $0,5 \text{ g/cm}^3$.

Dans le cas de la matrice en fer, nous pouvons remarquer que l'allure des courbes est similaire à celle obtenue en configuration sans fût. L'épaisseur optimale de thermalisant est la même pour les deux masses volumiques bien que la sensibilité diminue lorsque l'on considère une masse volumique plus élevée. Pour une matrice en PVC, il apparaît que l'épaisseur idéale de polyéthylène est plus faible et diminue si la masse volumique augmente. À masse volumique égale, nous pouvons remarquer que la matrice en PVC pénalise plus fortement la sensibilité que la matrice en fer, et davantage pour celle des neutrons retardés que celle des neutrons prompts. En effet, la matrice en PVC — contenant de l'hydrogène — thermalise davantage les neutrons que la matrice en fer.

Le choix de l'épaisseur des parois de la cellule résulte d'un compromis entre différents critères. Notre cellule doit présenter de bonnes performances pour différentes matrices pouvant être contenues dans un colis maquette. Cependant, la cellule devra pouvoir répondre à diverses applications d'irradiation nécessitant un haut flux de neutrons thermiques. De plus, bien qu'un système de détection neutronique soit associé à l'enceinte d'irradiation, notre cellule pourra également être utilisée avec un système de détection des gamma retardés, et dans ce cas, l'épaisseur de polyéthylène adéquate serait celle qui maximiserait le taux de fission. Compte tenu de ces différentes considérations, une épaisseur de polyéthylène de 5 cm constitue un compromis intéressant. Nous avons également évalué le gain en performance obtenu avec une épaisseur différente pour les parois de l'enceinte contre lesquels reposent les blocs de détection et les autres parois. Dans cette configuration, ces derniers auraient une épaisseur plus importante (10 cm par exemple) afin de favoriser le taux de fission dans la cellule. Cependant, cette configuration n'a pas été retenue en raison du bénéfice peu important sur le taux de fission et le temps de demi-vie des neutrons interrogateurs dans la cellule.

1.2 Source de neutrons

1.2.1 Accélérateur d'électrons *versus* générateur de neutrons

Nous avons démontré précédemment être en mesure de générer près de 10^{11} n/s avec notre accélérateur d'électrons. Cette valeur d'intensité moyenne d'émission est supérieure de l'ordre de deux décades par rapport aux $2 \cdot 10^9$ n/s délivrés par un générateur de neutrons deutérium-tritium GENIE 36. De plus, ce dernier produit des neutrons de 14 MeV alors que nous avons montré que les photoneutrons émis par notre accélérateur présentent un spectre en énergie ayant pour valeur moyenne environ 1 MeV. Au cours de cette nouvelle étude, nous avons cherché à comparer, à intensité moyenne d'émission égale, le potentiel de ces deux instruments pour la réalisation de mesures d'interrogation neutronique active. Nous avons simulé alternativement le taux de fission dans un échantillon d' ^{235}U avec l'une ou l'autre de ces deux sources au sein d'une enceinte thermalisante en polyéthylène pour des parois de différentes épaisseurs entre 1 cm et 30 cm. La figure 4.8 présente ces résultats. Nous pouvons constater que la source de photoneutrons permet d'atteindre un taux de fission plus de trois fois supérieur par rapport à la source de neutrons de 14 MeV. À l'aide de simulations complémentaires, nous avons vérifié que les temps de demi-vie des neutrons interrogateurs produits par ces deux sources étaient équivalents. Les écarts de performances observés s'expliqueraient par le fait que les neutrons de 14 MeV se thermalisent plus en profondeur dans la couche de polyéthylène. Cela favoriserait la fuite des neutrons vers l'extérieur de l'enceinte et augmenterait leur probabilité d'absorption dans le matériau thermalisant.

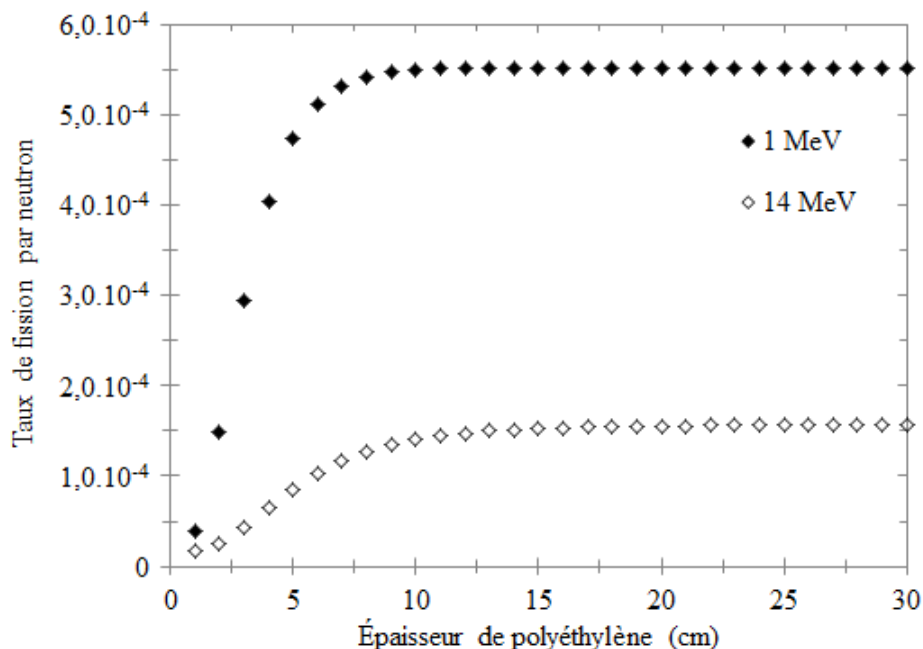


Figure 4.8 : Taux de fission induit par un accélérateur d'électrons (photoneutrons d'énergie moyenne d'1 MeV) ou un générateur deutérium-tritium (neutrons de 14 MeV).

1.2.2 Conception d'une source de photoneutrons

Dans cette étude, lorsqu'aucune position n'est spécifiée pour la cible de conversion, celle-ci est placée à 15 cm à l'intérieur de la cellule et en position excentrée par rapport à l'emplacement du fût afin de limiter les réactions de photofission parasites lors de la mesure d'interrogation neutronique active, voir figure 4.2.

1.2.2.1 Matériau de la cible

Deux matériaux sont adaptés à la production massive de photoneutrons par une cible de conversion : le tungstène et le tantale [Seltzer73, Swanson79, Jallu99b]. Nous avons montré au second chapitre que la production photoneutronique d'une cible de tungstène est supérieure d'environ 20% à celle d'une cible de tantale. Cependant, les erreurs de seuil des sections efficaces photonucléaires (γ, xn) de trois des cinq isotopes du tungstène naturel peuvent amener à effectuer le choix d'une cible de tantale plutôt que celui d'une cible de tungstène, dans la perspective de simulations MCNPX à réaliser. Il est également utile de rappeler que nous avons mis en évidence une tendance générale à la sous-évaluation des sections efficaces photonucléaires de ces deux matériaux induisant une sous-estimation de l'émission photoneutronique comprise entre 15% et 30%.

1.2.2.2 Épaisseur de la cible

Nous avons étudié l'évolution du taux de fission dans la cellule en fonction de l'épaisseur de la cible de conversion. Les simulations ont été réalisées pour une cible de tantale de 5 cm de diamètre, irradiée par des électrons de 15 MeV, et dont l'épaisseur est comprise entre 5 mm et 5 cm. Nos résultats, visibles sur la figure 4.9, montre que le taux de fission augmente avec l'épaisseur de la cible puis atteint un seuil. Ces résultats confortent nos conclusions présentées au chapitre 2 quant au choix d'une cible de 3 cm d'épaisseur, pour réaliser des mesures d'interrogation neutronique active à l'aide d'un accélérateur d'électrons.

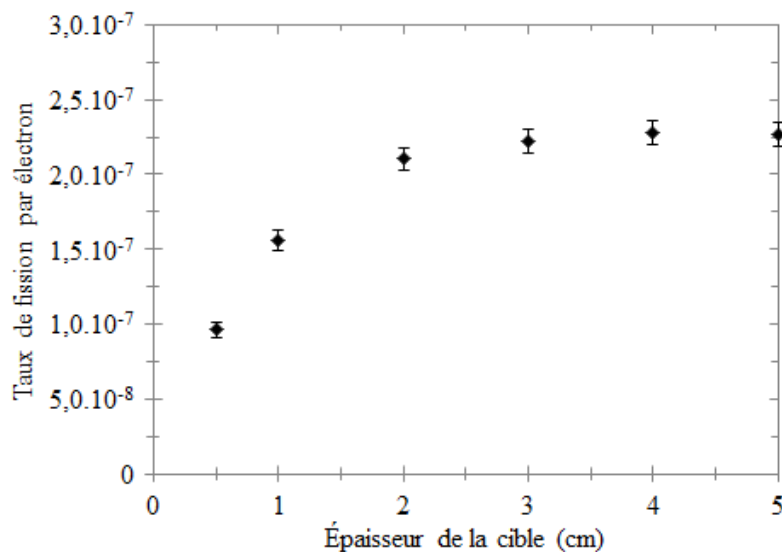


Figure 4.9 : Taux de fission en fonction de l'épaisseur de la cible de conversion.

1.2.2.3 Énergie des électrons

Nous avons également étudié l'évolution des performances de la cellule avec l'énergie des électrons irradiant la cible de conversion. Les simulations ont été conduites pour une cible de tantale d'1 cm d'épaisseur et de 5 cm de diamètre (cible de référence pour les mesures) irradiée par des électrons monoénergétiques entre 10 MeV et 20 MeV. La figure 4.10 présente nos résultats. Le taux de fission croît avec l'énergie des électrons. Nous pouvons par exemple obtenir un gain d'un facteur cinq sur le taux de fission en réalisant des mesures pour une énergie d'électrons de 19 MeV plutôt que 14 MeV.

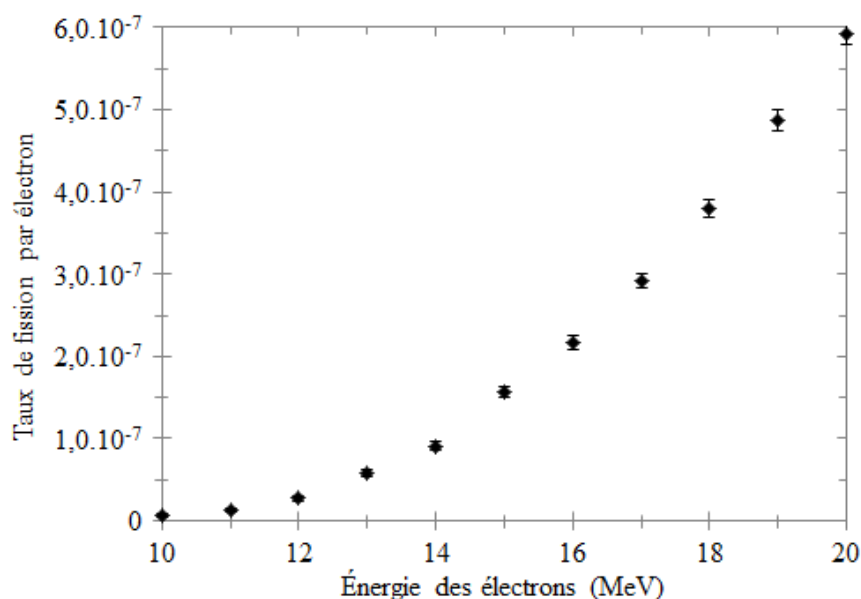


Figure 4.10 : Évolution du taux de fission dans un échantillon d' ^{235}U en fonction de l'énergie des électrons.

1.2.2.4 Position de la cible

L'emplacement de la cible de conversion doit être choisi de manière à minimiser l'impact des réactions de photofission parasites durant les mesures d'interrogation neutronique active. Afin de quantifier l'impact de cet effet, nous avons simulé le taux de photofission dans un échantillon d' ^{235}U pour différents emplacements de la cible, l'échantillon de matière fissile étant positionné au centre de l'emplacement du colis. Sur la figure 4.11, un repère indique les différents emplacements de la cible de conversion. L'indication « 70 cm » correspond à la position de la cible au fond de l'enceinte tandis que « 0 cm » correspond au positionnement de la cible à l'entrée de la cellule. Soulignons cependant que nous avons vérifié par simulation que lorsque la cible est placée en position 5 cm, le taux de photofission dans l'échantillon placé au centre de l'emplacement du colis est près de 600 fois inférieures par rapport à celui obtenu dans un échantillon placé face à la cible (échantillon en position 35 cm).

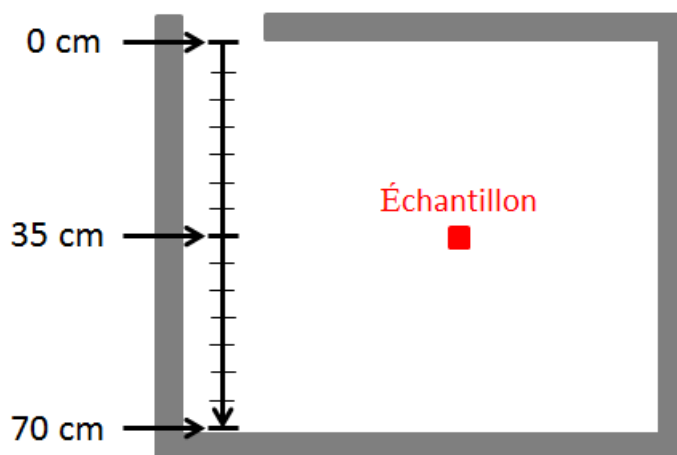


Figure 4.11 : Position de la cible dans la cellule.

La figure 4.12 présente l'évolution du taux de photofission dans l'échantillon au centre de l'emplacement du fût en fonction de la position de la cible. Elle montre une diminution de l'impact de la photofission avec la profondeur de la cible dans l'enceinte. Le taux de photofission dans l'échantillon est près de quatre fois inférieure pour une cible en position 65 cm par rapport à celui obtenu pour une cible placée en position 5 cm. Afin d'interpréter ce résultat, nous avons déterminé la distribution angulaire des photons émis par la cible.

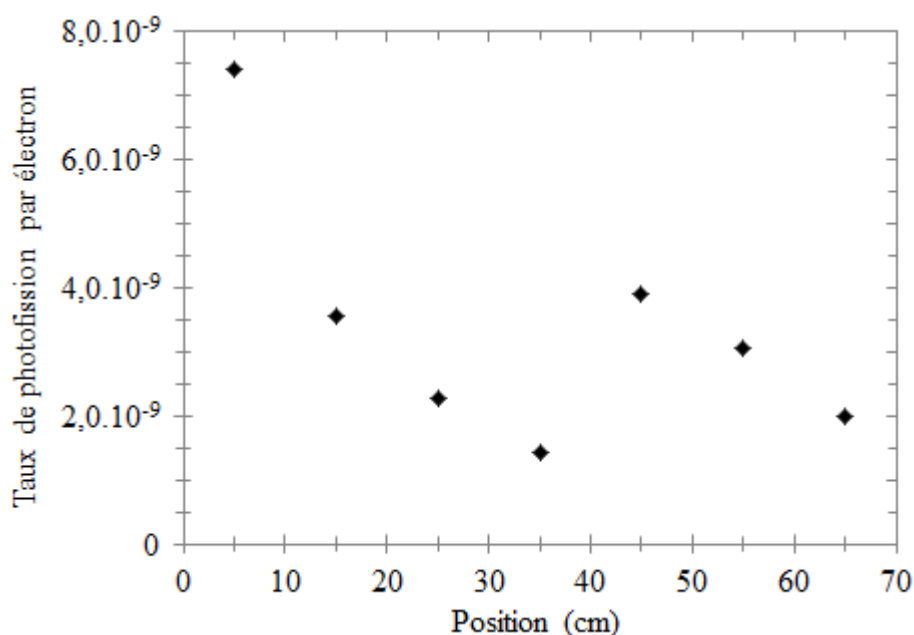


Figure 4.12 : Taux de photofission parasite en fonction de l'emplacement de la cible.

Nous avons étudié deux distributions angulaires photoniques : une incluant les photons de haute énergie (6 MeV et plus) et une incluant tous les photons. Celles-ci sont visibles sur la figure 4.13. Sur l'axe des abscisses, la référence « 0° » correspond au sens d'émission des électrons incidents sur la cible. Il est également important d'attirer l'attention du lecteur sur le

fait que l'axe des ordonnées est proposé en échelle logarithmique. Cette figure montre bien une forte tendance des photons de haute énergie à être dirigés vers l'avant et explique le taux de photofission plus élevé (mais qui reste faible par rapport au taux de fission par neutrons thermiques) lorsque la cible est placée à proximité de l'entrée de la cellule. La distribution angulaire présente également une baisse à 90° en raison du fait que les photons émis le long du diamètre de la cible ont une certaine probabilité à être réabsorbés avant de parvenir à s'échapper de celle-ci. Remarquons également que les photons émis dans cet angle solide, centré en 90° , irradient l'échantillon d' ^{235}U lorsque la cible est placée en position 35 cm. Au-delà de 90° , la distribution remonte puis diminue lentement ce qui est en accord avec l'allure de la courbe exposée sur la figure 4.12.

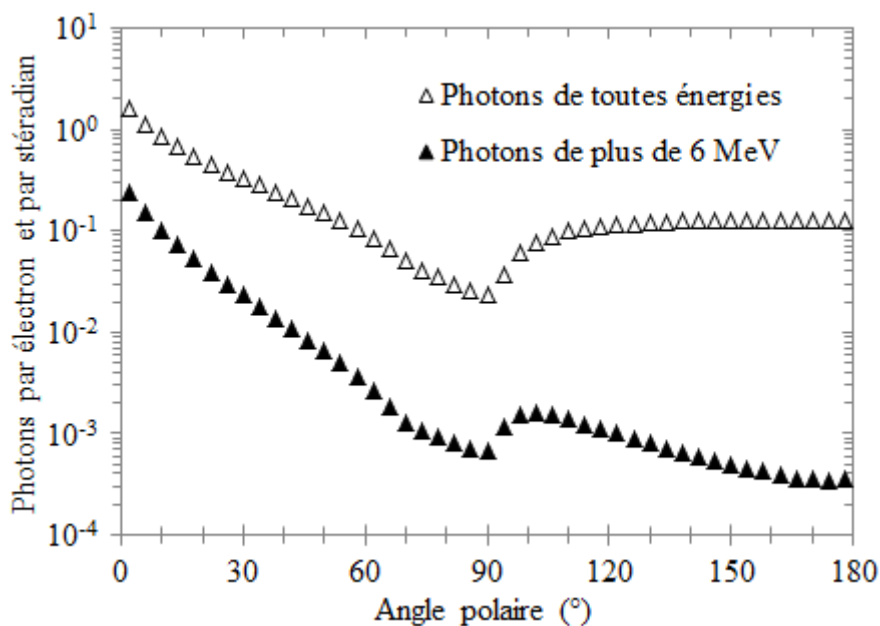


Figure 4.13 : Distribution angulaire des photons émis par la cible.

1.2.2.5 Enrobage de la cible

Lors de la réalisation de mesures d'interrogation neutronique active avec un générateur deutérium-tritium émettant des neutrons de 14 MeV, la part de fission rapide apporte une information sur la masse d'actinides fertiles. Cependant, lors de la mise en œuvre de cette technique avec un accélérateur d'électrons, cette dernière apporte peu d'informations car l'énergie moyenne des photoneutrons (d'environ 1 MeV) est du même ordre de grandeur que celle du seuil de fission rapide sur l' ^{238}U . De plus, la réalisation d'une cellule neutronique purement thermique permettrait de s'affranchir d'une incertitude liée au fait que les effets d'autoprotection sont différents pour les parts de fission thermique et de fission rapide. Nous avons donc cherché à savoir si un enrobage de polyéthylène autour de la cible de conversion pourrait permettre de diminuer la contribution de la fission rapide au sein de notre cellule. En première approximation, la part de photofission étant faible devant les parts de fissions thermique et rapide, cette dernière a été directement déduite par comparaison entre les simulations d'une irradiation avec et sans cadmium autour d'un échantillon d'uranium enrichi

à 100%. Les simulations ont été réalisées pour un enrobage de polyéthylène autour de la cible allant jusqu'à 10 cm. La figure 4.14 montre la part relative de la fission rapide et la figure 4.15 le taux de fission dans l'échantillon (en l'absence de matrice).

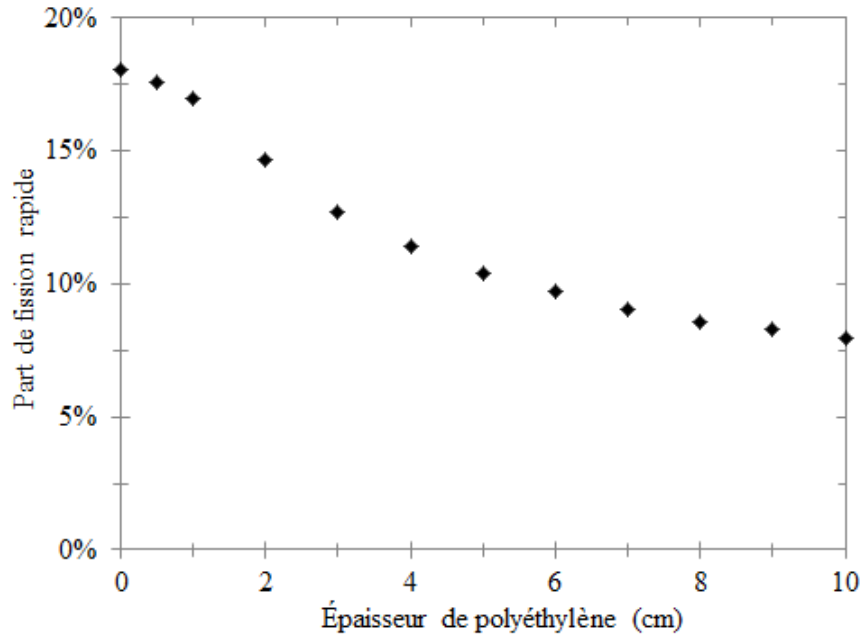


Figure 4.14 : Part de la fission rapide dans l'échantillon en fonction de l'épaisseur d'enrobage de polyéthylène autour de la cible.

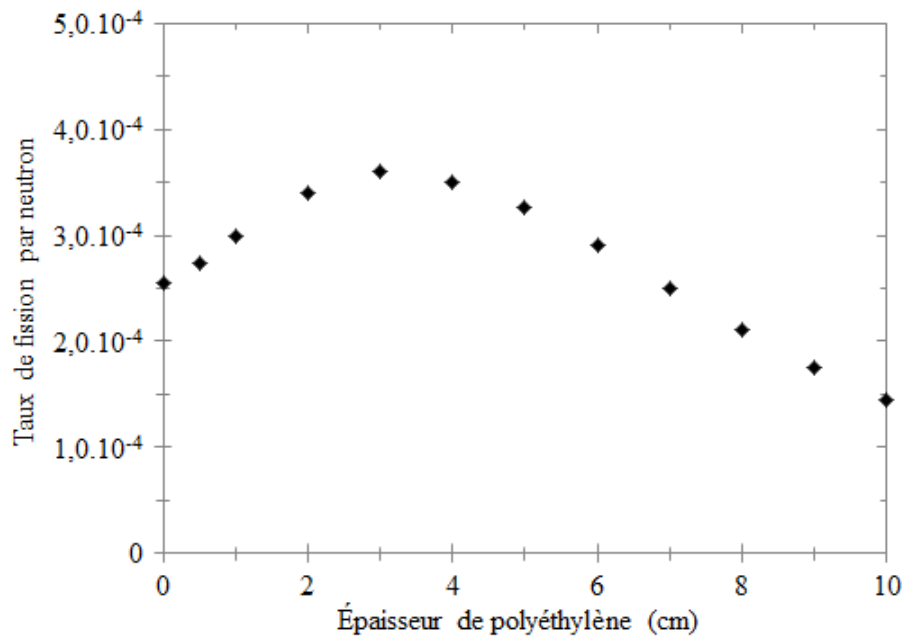


Figure 4.15 : Taux de fission dans l'échantillon en fonction de l'épaisseur d'enrobage de polyéthylène autour de la cible.

La masse volumique élevée de l'échantillon ($19,1 \text{ g/cm}^3$) et sa géométrie (cube de 2 cm de côté) expliquent la part significative de fission rapide. Cependant, nous pouvons voir que la contribution relative de fission rapide peut être atténuée d'un facteur deux environ à l'aide d'un enrobage de 10 cm, par exemple, bien que ce dernier entraîne également une diminution du taux de fission de près d'un facteur deux. Il est également intéressant de noter qu'un enrobage de 3 cm de polyéthylène autour de la cible permet d'augmenter la sensibilité de la cellule de l'ordre de 25 % (pour une configuration échantillon nu).

1.3 Blocs de détection

La troisième partie de cette étude de conception par simulation de la cellule neutronique concerne l'optimisation des blocs de détection neutronique. Cependant, il est important de noter, qu'en raison de contraintes expérimentales, les blocs utilisés pour les mesures que nous exposerons par la suite resteront ceux adaptés à la mesure d'interrogation photonique active et que ces blocs sont constitués de trois détecteurs ^3He . Nous avons réalisé notre étude en partant de la géométrie de blocs actuellement disponibles sur l'installation SAPHIR. Ces derniers sont constitués de cinq détecteurs ^3He d'un mètre de long logés dans du polyéthylène enrobé de cadmium. En vue de dimensionner un unique système de détection neutronique adapté pour réaliser successivement des mesures d'interrogation neutronique active et d'interrogation photonique active, cette étude a été réalisée en s'appuyant sur quatre critères de performances, à savoir :

- l'efficacité absolue de détection des neutrons retardés de photofission,
- l'efficacité absolue de détection des neutrons retardés de fission thermique,
- l'efficacité absolue de détection des neutrons prompts de fission thermique,
- le temps de demi-vie des neutrons rapides dans les blocs de détection.

Nous rappelons que ce quatrième paramètre doit être minimisé afin de détecter les neutrons prompts le plus tôt possible durant une mesure. Nous avons d'abord étudié l'impact de différentes dispositions des cinq détecteurs au sein du bloc de détection. Nous avons ensuite déterminé l'épaisseur optimale de polyéthylène sur la face avant puis la face arrière du bloc. Dans nos simulations, 40 cm séparent la source de neutrons retardés de photofission et la face avant du bloc de détection en configuration de mesure d'interrogation photonique active. En configuration de mesure d'interrogation neutronique active, la source de neutrons prompts ou retardés de fission thermique et la face avant du bloc de polyéthylène de l'enceinte de la cellule — derrière lequel se situe un bloc de détection — sont distantes de 35 cm (40 cm entre la source et la face avant du bloc de détection). La figure 4.16 illustre ces deux configurations.

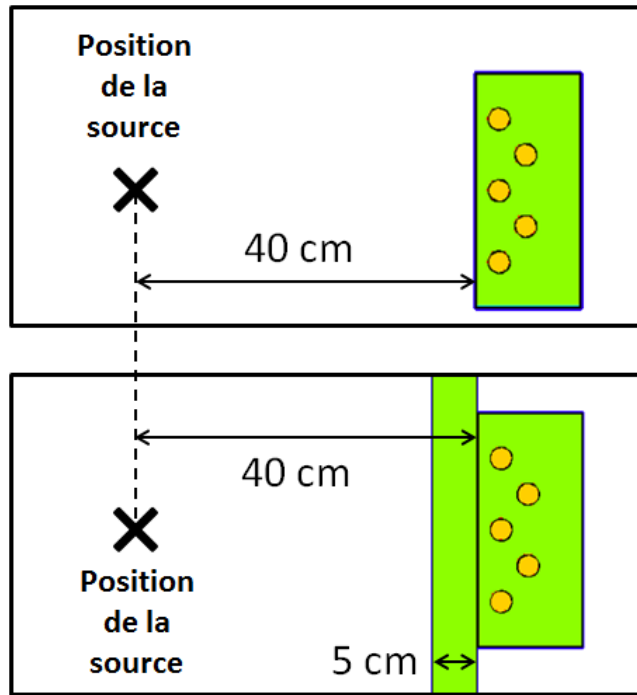


Figure 4.16 : Bloc de détection en configuration d'interrogation photonique active en haut et d'interrogation neutronique active en bas.

1.3.1 Disposition des détecteurs à ^3He

Les blocs de détection à disposition sont constitués de deux rangées de détecteurs à ^3He . Trois tubes sont alignés sur la première rangée et deux sur la seconde. La figure 4.17 illustre cette configuration.

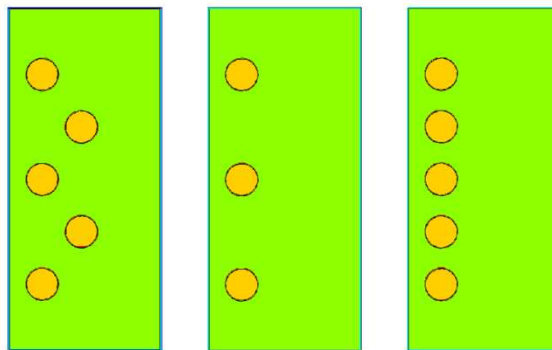


Figure 4.17 : Représentations MCNPX de trois configurations pour le positionnement de détecteurs ^3He dans un bloc de détection. Configurations numérotées 1, 2 et 3 de la gauche vers la droite.

Afin de vérifier l'intérêt d'utiliser un dispositif à deux rangées et de mettre en évidence les performances offertes par un bloc à cinq tubes par rapport à un bloc de trois tubes, nous avons étudié deux autres configurations, comme indiqué sur cette même figure : l'une est constituée d'une rangée de trois tubes et l'autre d'une rangée de cinq tubes. Le

tableau 4.1 rassemble les efficacités de détection simulées pour ces différents dispositifs pour les neutrons retardés en configuration de mesure d'interrogation photonique active et pour les neutrons prompts et retardés en configuration de mesure d'interrogation neutronique active. Le tableau 4.2 présente les temps de demi-vie des neutrons prompts en configuration INA pour ces différentes dispositions des tubes à ^3He .

	Config. 1	Config. 2	Config. 3	$\frac{\text{Config. 2}}{\text{Config. 1}}$	$\frac{\text{Config. 3}}{\text{Config. 1}}$
Neutrons prompts de fission thermique	$5,22 \cdot 10^{-3}$	$3,44 \cdot 10^{-3}$	$5,19 \cdot 10^{-3}$	<i>0,66</i>	<i>0,99</i>
Neutrons retardés de fission thermique	$3,87 \cdot 10^{-3}$	$2,79 \cdot 10^{-3}$	$4,30 \cdot 10^{-3}$	<i>0,72</i>	<i>1,11</i>
Neutrons retardés de photofission	$9,40 \cdot 10^{-3}$	$5,79 \cdot 10^{-3}$	$8,76 \cdot 10^{-3}$	<i>0,62</i>	<i>0,93</i>

Tableau 4.1 : Efficacités de détection absolue pour les trois configurations des blocs de détection de la figure 4.17.

	Config. 1	Config. 2	Config. 3	$\frac{\text{Config. 2}}{\text{Config. 1}}$	$\frac{\text{Config. 3}}{\text{Config. 1}}$
Neutrons prompts de fission thermique	34,69 μs	37,73 μs	35,15 μs	<i>1,09</i>	<i>1,01</i>

Tableau 4.2 : Temps de demi-vie pour les trois configurations des blocs de détection.

Il apparaît que l'utilisation de cinq tubes permet d'atteindre des efficacités de détection absolue supérieures par rapport celles obtenues avec la configuration à trois détecteurs. En vue de réaliser un bloc polyvalent destiné aux mesures d'interrogation photonique active et aux mesures d'interrogation neutronique active, nous concluons que la disposition des cinq tubes sur une unique rangée est justifiée. Une configuration en deux rangées n'apportant pas de gain notable en termes de performances. De plus, le choix d'un bloc constitué de cinq tubes en ligne réduit le nombre de paramètres à optimiser. Nous nous intéresserons à l'optimisation de l'épaisseur de polyéthylène sur la face avant du bloc et sur sa face arrière. Le bloc de détection constitué de cinq tubes en ligne, représentés sur la figure 4.17, possède une épaisseur de polyéthylène d'1,25 cm sur la face avant et de 7,75 cm sur la face arrière.

1.3.2 Épaisseur de polyéthylène sur la face avant

Nous avons simulé l'efficacité de détection — pour les neutrons retardés de photofission, les neutrons prompts et les neutrons retardés de fission thermique — pour différentes épaisseurs de polyéthylène sur la face avant du bloc de détection en maintenant une épaisseur constante de 7,75 cm sur la face arrière. La figure 4.18 présente ces résultats. L'efficacité de détection augmente avec l'épaisseur de polyéthylène sur la face avant, atteint

un optimum, puis diminue. L'optimum étant obtenu pour une épaisseur de polyéthylène différente pour les trois types de neutrons à détecter, une épaisseur de près de 2 cm de polyéthylène constituerait un compromis satisfaisant (épaisseur du bloc actuel : 1,25 cm). Précisons également que les différences entre les efficacités de détection des neutrons retardés de fission thermique et de photofission sont dues à la présence de polyéthylène devant le bloc de détection en configuration de mesure d'interrogation neutronique active.

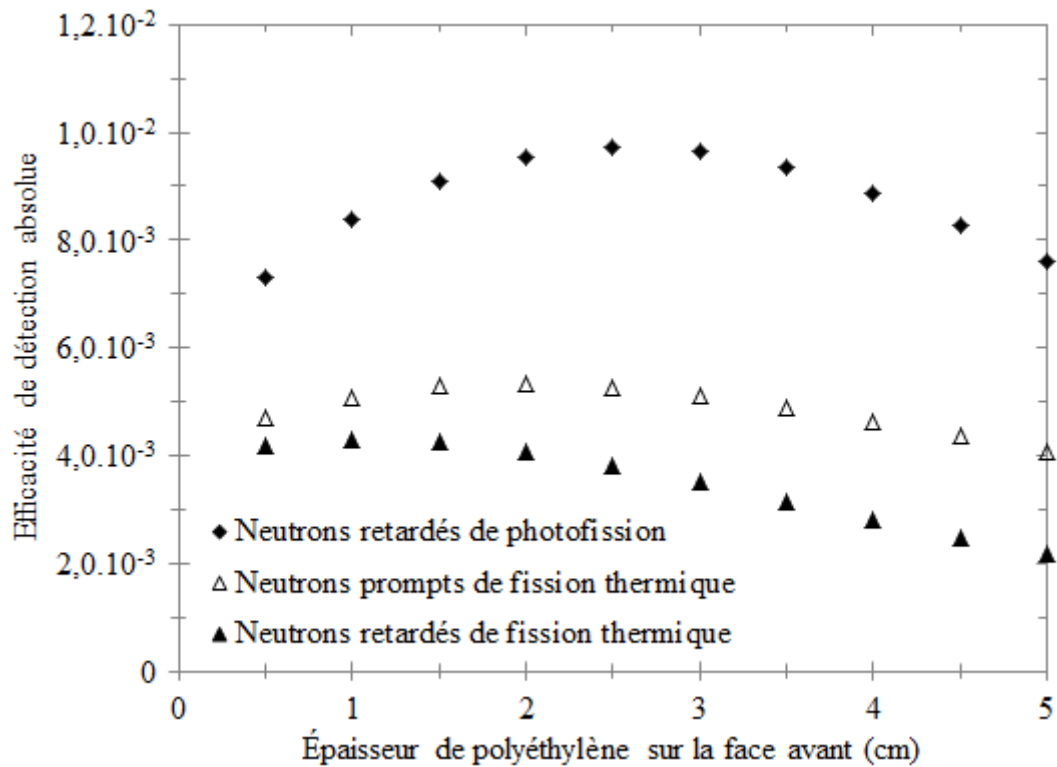


Figure 4.18 : Efficacité de détection absolue en fonction de l'épaisseur de polyéthylène sur la face avant du bloc.

Nous avons également déterminé le temps de demi-vie des neutrons prompts de fission thermique dans le bloc de détection. Comme l'illustre la figure 4.19, l'épaisseur de polyéthylène sur la face avant du bloc n'entraîne pas de variation importante sur le temps de demi-vie, et une épaisseur comprise entre 2 cm et 3 cm permet de minimiser ce paramètre.

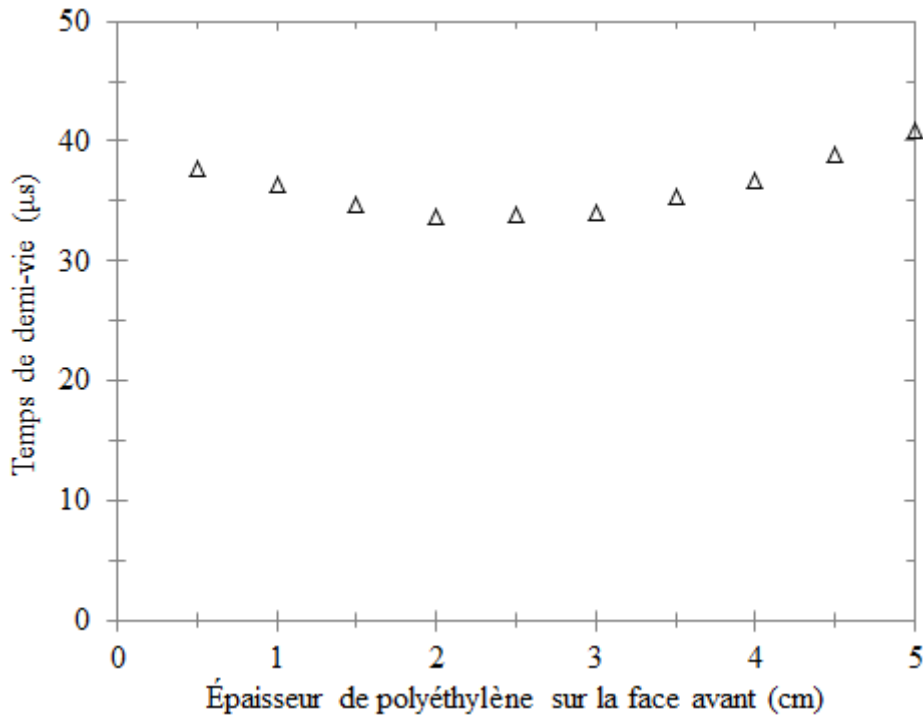


Figure 4.19 : Temps de demi-vie des neutrons prompts de fission thermique en fonction de l'épaisseur de polyéthylène sur la face avant du bloc.

1.3.3 Épaisseur de polyéthylène sur la face arrière

Nous avons ensuite simulé l'efficacité de détection — pour les neutrons retardés de photofission, les neutrons prompts et les neutrons retardés de fission thermique — pour différentes épaisseurs de polyéthylène sur la face arrière du bloc de détection en maintenant une épaisseur constante de 1,25 cm sur la face avant. La figure 4.20 présente nos résultats. Les temps de demi-vie des neutrons prompts de fission thermique dans le bloc de détection sont présentés sur la figure 4.21. Il apparaît que le temps de demi-vie connaît des variations importantes avec l'épaisseur de polyéthylène sur la face arrière, ce qui est en accord avec les résultats d'A. Mariani *et al.* [Mariani03]. Le temps de demi-vie augmente avec l'épaisseur de polyéthylène et les efficacités de détection également, bien que ces dernières atteignent une valeur seuil. Une épaisseur de 3 cm de polyéthylène sur la face arrière constituerait un compromis satisfaisant (épaisseur actuelle de 7,75 cm).

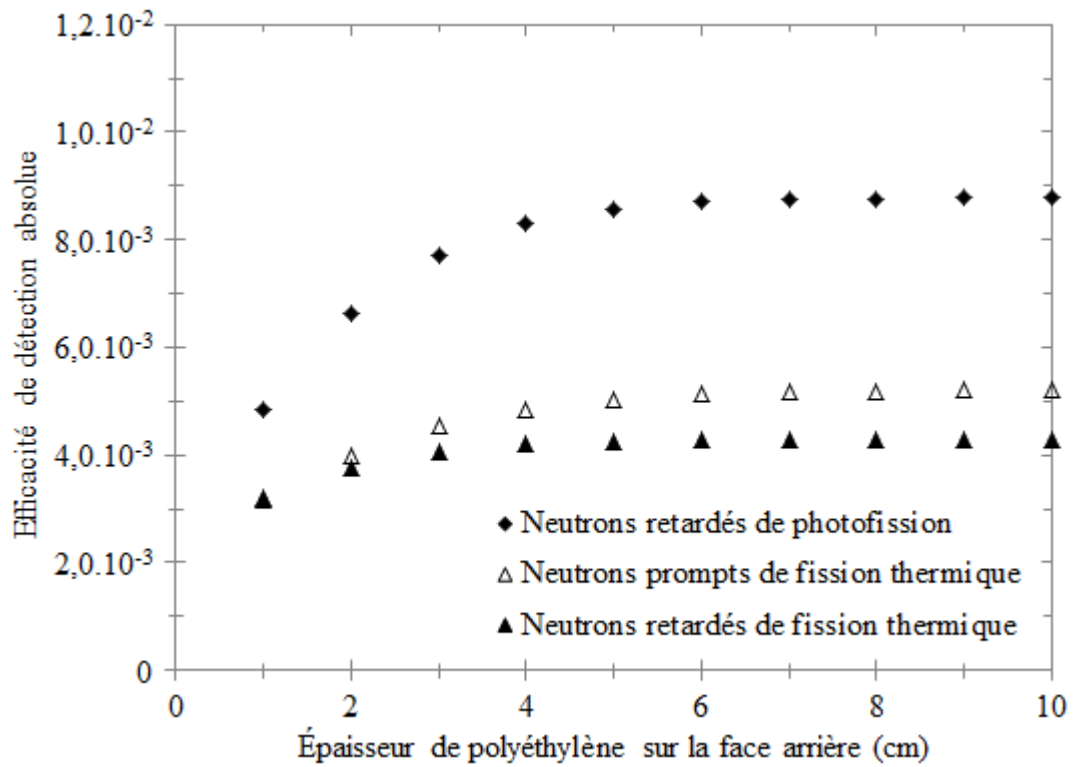


Figure 4.20 : Optimisation de l'efficacité de détection absolue par ajustement de l'épaisseur de polyéthylène sur la face arrière du bloc.

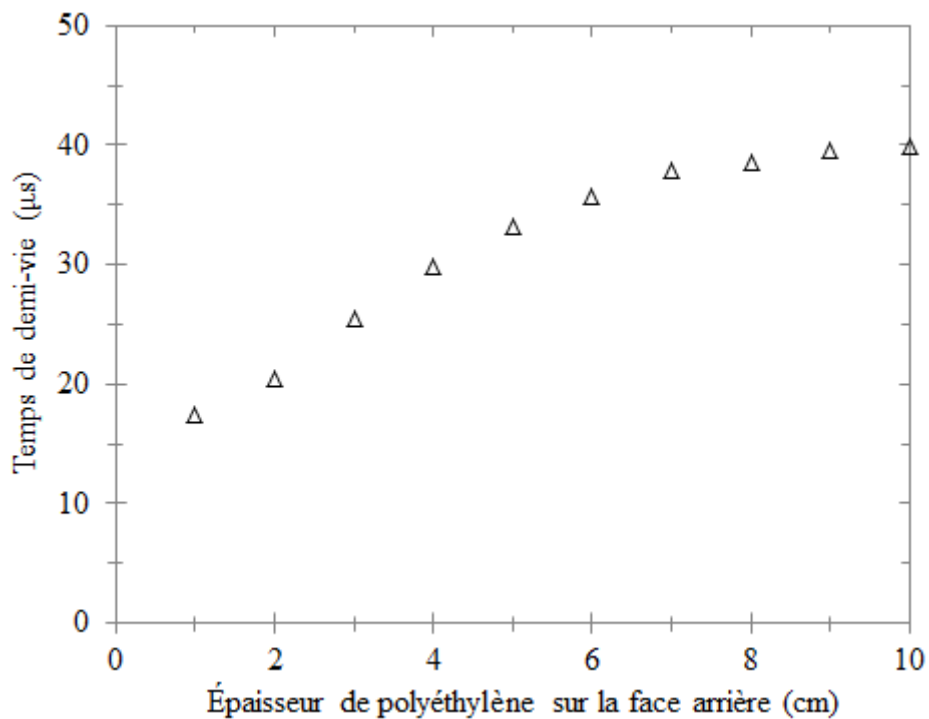


Figure 4.21 : Variation du temps de demi-vie des neutrons prompts de fission thermique en fonction de l'épaisseur de polyéthylène sur la face arrière du bloc.

1.3.4 Performances d'un bloc optimisé

Un bloc de détection optimisé serait caractérisé par un temps de demi-vie des neutrons prompts de fission thermique plus court que celui d'un bloc actuel. Un bloc optimisé — constitué de cinq détecteurs ^3He alignés (configuration n°3) et offrant un bon compromis entre les différents critères de performances retenus — pourrait être réalisé avec les dimensions suivantes : une épaisseur de 2 cm de polyéthylène sur la face avant et une épaisseur de 3 cm de polyéthylène sur la face arrière. Le tableau 4.3 présente une comparaison entre les performances offertes par un tel bloc et le bloc actuellement à notre disposition sur l'installation SAPHIR. Il apparaît que le temps de demi-vie des neutrons prompts de fission thermique pourrait ainsi être réduit de 25 % sans trop affecter les différentes efficacités de détection neutroniques.

		Bloc optimisé	Bloc actuel	$\frac{\text{Bloc optimisé}}{\text{Bloc actuel}}$
Efficacité de détection absolue	Neutrons prompts de fission thermique	$4,77.10^{-3}$	$5,22.10^{-3}$	0,91
	Neutrons retardés de fission thermique	$3,89.10^{-3}$	$3,87.10^{-3}$	1,01
	Neutrons retardés de photofission ²	$8,71.10^{-3}$	$9,40.10^{-3}$	0,93
Temps de demi-vie	Neutrons prompts de fission thermique	26,47 μs	35,23 μs	0,75

Tableau 4.3 : Comparaison entre les performances d'un bloc de détection optimisé et celles d'un bloc constitué de cinq tubes disponible sur l'installation SAPHIR.

1.4 Configuration dédiée à la mesure d'interrogation photonique active

La cellule de mesure réalisée doit permettre aux expérimentateurs de procéder à la mesure d'interrogation photonique active du fût une fois la mesure d'interrogation neutronique active effectuée. La réalisation séparée de ces deux techniques d'irradiation permet ainsi d'offrir une configuration optimisée pour chacune des mesures. Nous nous attachons donc à concevoir une cellule de mesure neutronique compatible avec la mesure d'interrogation photonique active en veillant tout particulièrement aux aspects pratiques d'un tel changement de configuration de mesure. Nous avons d'abord entrepris de caractériser le

² La cellule de mesure en polyéthylène utilisée lors de la mesure par interrogation neutronique active est retirée lorsque l'on procède à la mesure par interrogation photonique active.

flux de photons délivré par l'accélérateur en termes de distribution angulaire et de distribution angle-énergie.

Nous avons simulé avec MCNPX la distribution angulaire des photons émis par une cible en tungstène de 5 mm d'épaisseur et de 5 cm de diamètre. Nous nous sommes intéressés à des énergies d'électrons de 10 MeV, 15 MeV et 20 MeV. Nos résultats sont présentés sur la figure 4.22 où l'axe des ordonnées est présenté sous forme d'échelle logarithmique. Nous pouvons remarquer que la distribution angulaire présente une forte anisotropie dans l'axe du faisceau d'électrons et que cette dernière est d'autant plus importante que l'énergie des électrons considérée est élevée. L'atténuation visible dans le plan du diamètre de la cible (aux environs de 90°) s'explique par le fait que les photons émis le long du diamètre de la cible présente une importante probabilité d'être absorbés avant de pouvoir s'échapper. Sur cette même figure, nos résultats sont comparés avec ceux obtenus par M.J. Berger et S.M. Seltzer [Berger70]. Ces derniers se sont intéressés à la distribution angulaire des photons provenant d'une cible de conversion en tungstène irradiée par des électrons de 30 MeV. Ils présentent plusieurs distributions pour différentes épaisseurs de cible. Les épaisseurs, notées z , sont exprimées sous forme de fraction de r_0 , le parcours moyen des électrons dans la cible. L'allure de ces distributions angulaires est conforme avec celles que nous avons obtenues.

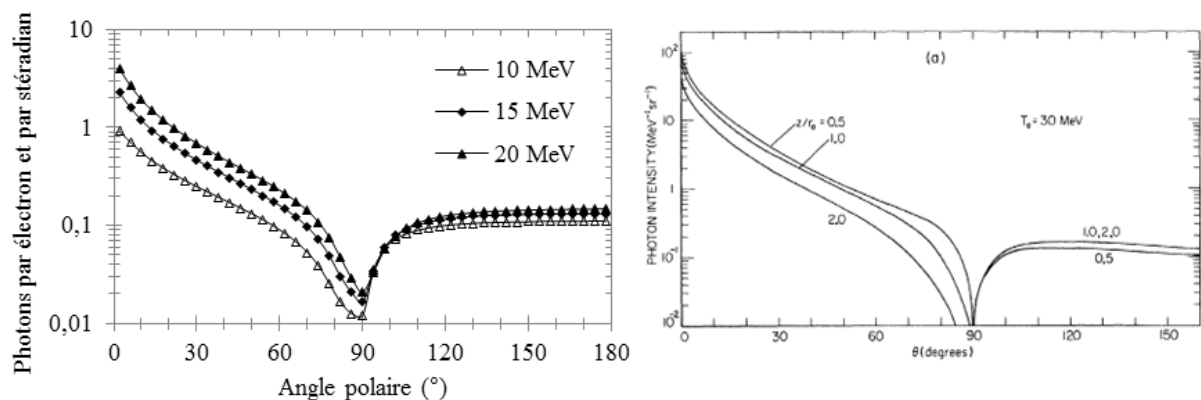


Figure 4.22 : Distribution angulaire du flux de photons émis par une cible de tungstène irradiée par des électrons de 10 MeV, 15 MeV et 20 MeV. Comparaison des calculs MCNPX (à gauche) avec ceux publiés par Berger *et al.* [Berger70].

Nous avons déterminé la relation entre la distribution angulaire des photons émis par la cible de tungstène de 5 mm d'épaisseur, et leur énergie moyenne par segment angulaire. Nous avons réalisé ces calculs pour une énergie d'électrons de 15 MeV. Nos résultats sont présentés sur la figure 4.23. En guise de comparaison, cette figure montre de plus les résultats obtenus pour ces mêmes calculs effectués pour les photoneutrons émis par la cible. Cette figure présente également une comparaison de nos résultats avec ceux publiés par H.-B. Xu *et al.* [Xu10]. Ces derniers ont étudié la relation entre la distribution angulaire et l'énergie moyenne pour les photons, les photoneutrons, et les électrons de fuite, émis par une cible de tantale irradiée par des électrons de 20 MeV.

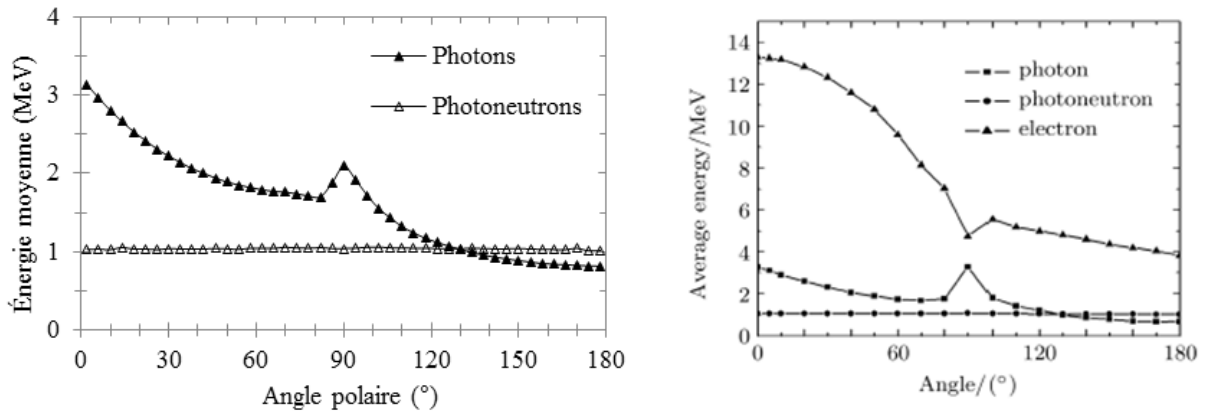


Figure 4.23 : À gauche : distributions angle-énergie simulées avec MCNPX pour les photons et les photoneutrons émis par une cible de tungstène de 5 mm d'épaisseur irradiée par des électrons de 15 MeV. À droite : résultats publiés par H.-B. Xu *et al.* [Xu10].

Les photons émis vers l'avant sont les plus énergétiques. C'est pour cette raison que le fût est positionné face à la cible de conversion de l'accélérateur lors d'une mesure d'interrogation photonique active. Nos résultats, en accord avec ceux publiés par H.-B. Xu *et al.*, montrent que l'énergie moyenne des photons émis dans l'axe est d'un peu plus de 3 MeV. De manière générale, l'énergie des photons décroît de 0 à 180°, bien qu'un sursaut apparaisse à 90°. En effet, les photons les moins énergétiques émis le long du diamètre sont réabsorbés, ce qui contribue à élever l'énergie moyenne dans cette direction (effet de durcissement du spectre). Probablement en raison d'un diamètre de cible plus important, le sursaut en question est plus important sur les résultats présentés par H.-B. Xu *et al.* La longueur du diamètre de la cible n'a pas été précisée par les auteurs. Concernant les photoneutrons, aucune corrélation entre la distribution angulaire et l'énergie moyenne n'a été mise en évidence lors de nos calculs, ni lors de ceux de H.-B. Xu *et al.* L'énergie moyenne des photoneutrons est d'environ 1 MeV quel que soit leur angle d'émission.

Nous avons ensuite déterminé l'épaisseur de cible permettant d'optimiser la production de photons de haute énergie (photons présentant une énergie au moins égale à 6 MeV). Ces calculs ont été réalisés pour des électrons de 10 MeV, 15 MeV ou 20 MeV irradiant une cible de tungstène d'épaisseur variable. Nos résultats sont exposés sur la figure 4.24.

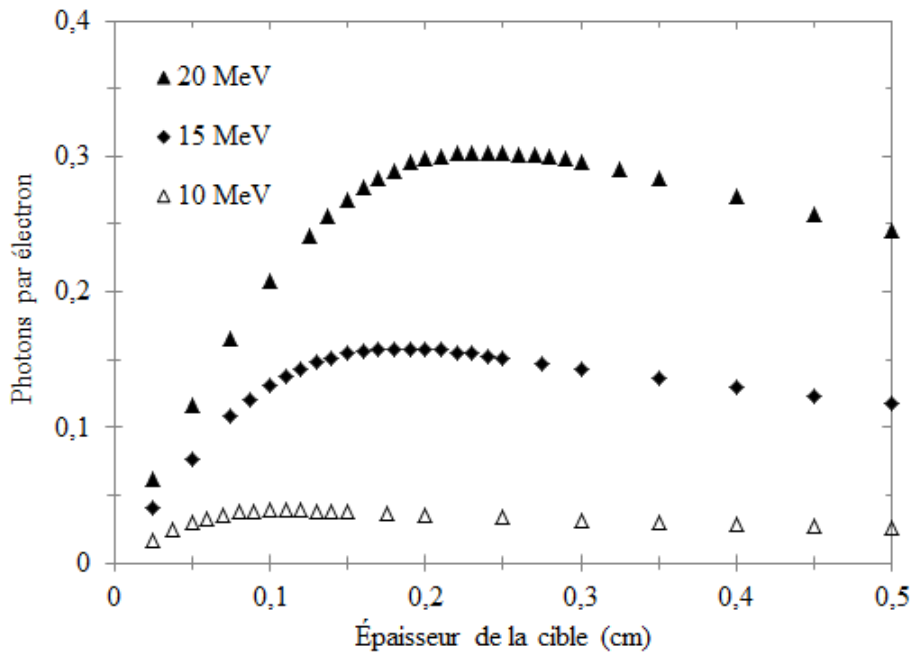


Figure 4.24 : Production de photons de plus de 6 MeV en fonction de l'épaisseur d'une cible de tungstène irradiée par des électrons de 10 MeV, 15 MeV, ou 20 MeV.

Les épaisseurs de cible permettant de maximiser la production de photons de haute énergie sont respectivement de près de 1,0 mm, 1,7 mm, et 2,3 mm pour les électrons de 10 MeV, 15 MeV, et 20 MeV. Parmi ces trois configurations, la cible de 2,3 mm d'épaisseur irradiée par des électrons de 20 MeV est celle qui permet de produire le plus de photons de haute énergie.

La mesure d'interrogation photonique active pourrait ainsi être réalisée en positionnant le fût de 220 L face à une cible fine de tungstène adaptée à l'énergie des électrons délivrés par l'accélérateur. Ce dernier serait ainsi équipé d'un système de porte-cible barillet comportant deux cibles de conversion, chacune d'elles étant optimisées pour la mesure d'interrogation neutronique ou photonique actives. Soulignons qu'un tel système est déjà présent sur certains accélérateurs comme le Saturne 43F (changement de cible en fonction de l'énergie d'irradiation). Afin de diminuer le flux parasite de photoneutrons durant cette mesure, nous proposons de concevoir une cellule dont les parois latérales et le toit pourraient être retiré simultanément à l'aide d'un pont roulant (système de cloche en polyéthylène). Pour des raisons pratiques, la plaque de polyéthylène supportant le fût serait ainsi conservée durant la mesure. Remarquons cependant, qu'en vue du dimensionnement d'une cellule à vocation industrielle, il serait envisageable d'adapter ce dispositif de manière à retirer l'ensemble des faces de la cellule lors du passage en configuration de mesure d'interrogation photonique active, et minimiser ainsi le flux de photoneutrons parasites durant cette mesure.

2. Évaluation expérimentale de la méthode sur colis maquette

Nous souhaitons évaluer les performances de notre méthode sur des fûts maquettes de 220 L disponibles sur l'installation SAPHIR. Dans un premier temps, nous présentons la cellule de mesure d'interrogation neutronique active fabriquée et les différents types de matrice testés dans le cadre de ces campagnes de mesures. Dans un second temps, les résultats expérimentaux sont exposés et discutés.

2.1 Dispositif de mesure

2.1.1 La cellule neutronique

Une représentation CAO et une photographie de la cellule de mesure neutronique conçue dans le cadre de ces travaux de thèse et réalisée par la société COMAT sont visibles sur la figure 4.25. La cellule est constituée de parois en polyéthylène de 5 cm d'épaisseur. Les bords des six faces de la cellule sont usinés en forme de chicanes afin d'assurer l'herméticité de la cavité de la cellule. L'ouverture parallélépipédique est destinée à l'insertion de la cible de conversion de l'accélérateur à l'intérieur de la cellule, tandis que le bouchon cylindrique amovible permet de positionner un détecteur gamma de type BGO ou LaBr₃ dans le cadre de campagnes de mesures spécifiques. Quatre anneaux de levage sont placés sur la partie supérieure de la cellule. Une fourche, fixée au convoyeur de l'installation SAPHIR et dont le rôle est de supporter et déplacer la cellule, a également été fabriquée. En raison de contraintes budgétaires, nous avons utilisé les blocs de détection neutronique disponibles sur notre installation (trois détecteurs ³He par bloc), bien que ces derniers soient optimisés pour la détection des neutrons retardés de photofission.

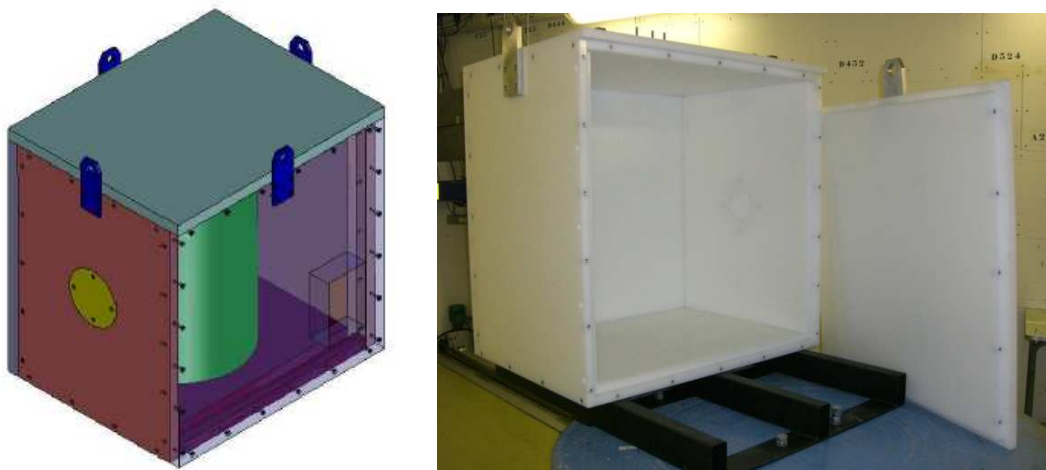


Figure 4.25 : À gauche : représentation de la cellule de mesure d'interrogation neutronique active de l'installation SAPHIR. À droite : la cellule sur sa fourche (face arrière retirée).

2.1.2 Performance de la nouvelle cellule

Nous avons d'abord entrepris de comparer les performances de notre nouvelle cellule de mesure avec celles de la cellule maquette qui a fait l'objet du chapitre précédent. Nous avons pour cela comparé les signaux neutroniques obtenus suite à l'interrogation d'un même échantillon dans les deux cellules (échantillon d'uranium enrichi à 9,6%), en l'absence de fût et avec un protocole expérimental identique. Ces résultats sont présentés sur la figure 4.26. Le bruit de fond actif est celui mesuré avec la nouvelle cellule. Le temps de demi-vie des neutrons dans la cavité de la cellule, déduit de la décroissance exponentielle des signaux prompts, est de $591 \mu\text{s}$ pour la maquette de cellule neutronique présentée au troisième chapitre et de $1026 \mu\text{s}$ pour la nouvelle cellule. À titre de comparaison, le temps de demi-vie des neutrons dans la cavité de la cellule de mesure PROMETHEE 6 du CEA Cadarache est de $1120 \mu\text{s}$ [Mariani03].

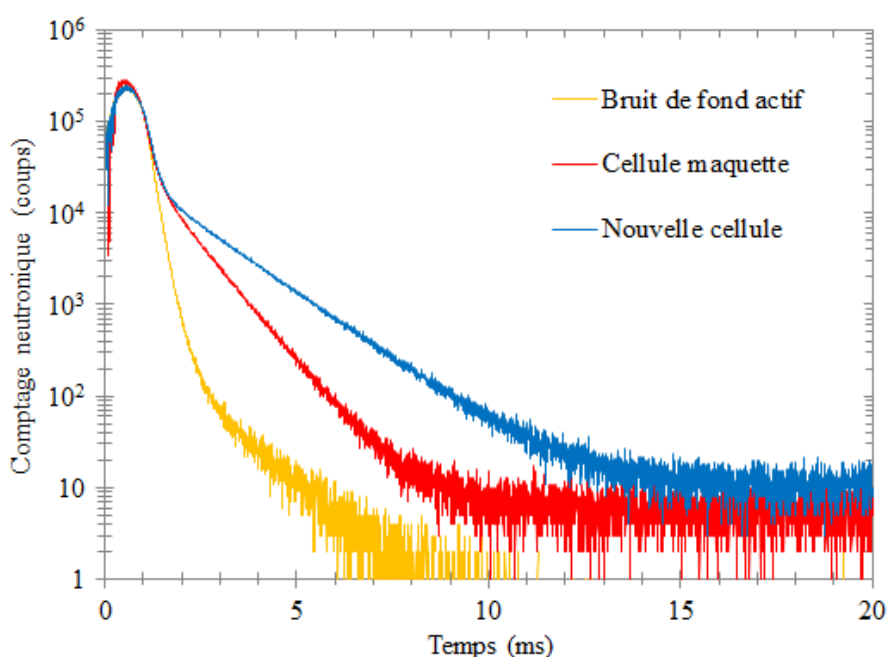


Figure 4.26 : Comparaison entre les comptages neutroniques obtenus avec la nouvelle cellule et la précédente pour un échantillon d'uranium enrichi à 9,6%.

2.1.3 Les matrices

Nous avons réalisé différentes matrices qui ont été introduites dans des fûts de 220 L. Ces dernières ont été produites à l'aide de différents matériaux à notre disposition sur l'installation. Nous avons réalisé une matrice vinyle de $0,02 \text{ g/cm}^3$, une matrice fer de $0,22 \text{ g/cm}^3$ et une matrice constituée de billes de polyéthylène de $0,45 \text{ g/cm}^3$. La figure 4.27 présente le fût positionné dans la cellule de mesure ainsi que la matrice vinyle tandis que la figure 4.28 montre la matrice fer et celle de polyéthylène. Pour chaque matrice, nous avons pris soin d'insérer un tube d'instrumentation, constitué d'un matériau adapté à la matrice, destiné à placer l'échantillon au centre du fût.



Figure 4.27 : À gauche : fût de 220 L placé dans la cellule de mesure d'interrogation neutronique active (face arrière retirée). À droite : fût contenant une matrice vinyle de $0,02 \text{ g/cm}^3$.



Figure 4.28 : À gauche : fût contenant une matrice fer de $0,22 \text{ g/cm}^3$. À droite : fût contenant une matrice polyéthylène de $0,45 \text{ g/cm}^3$.

Nous avons eu recours à la technique d'imagerie haute énergie afin de visualiser les matrices réalisées. La figure 4.29 montre l'image correspondant au fût contenant une matrice fer de $0,22 \text{ g/cm}^3$. Cette image, réalisée à l'aide de l'imageur numérique de type FIMEL EPID présenté au premier chapitre, a été retraitée à l'aide du logiciel Photoshop CS5. L'image permet de confirmer le haut niveau de remplissage du colis. Un échantillon placé au milieu du tube d'instrumentation et présentant une densité élevée est également bien visible.



Figure 4.29 : Image haute énergie d'un fût de 220 L contenant une matrice fer de $0,22 \text{ g/cm}^3$, image traitée à l'aide du logiciel Photoshop CS5.

2.2 Résultats expérimentaux

Les échantillons, en position centrée dans le fût, ont été irradiés durant 10 min. Le comptage des neutrons prompts et retardés a respectivement été effectué sur les fenêtres temporelles comprises entre 3 ms et 8 ms, et 15 et 20 ms après l'impulsion de $2,5 \mu\text{s}$ de durée. La fréquence d'utilisation de l'accélérateur était de 50 Hz pour ces mesures, et l'énergie moyenne du spectre d'électrons irradiant une cible de tantale d'1 cm d'épaisseur était de 17 MeV. Comme au chapitre précédent, les résultats de comptage neutronique ont été obtenus avec un bloc de détection constitué de trois détecteurs à ^3He et pour chaque signal neutronique, nous avons soustrait les bruits de fond actif et passif de l'installation. Enfin, nous n'indiquons les barres d'erreurs que lorsque leur taille excède celles des symboles.

2.2.1 Mesures sur échantillons nus

2.2.1.1 Différenciation de l' ^{235}U et du ^{239}Pu

Afin de vérifier les capacités de notre dispositif à différencier l' ^{235}U et le ^{239}Pu , nous avons procédé à l'irradiation de plusieurs couples d'échantillons d'uranium et de plutonium. Nous avons d'abord vérifié que le signal prompt ou retardé mesuré suite à l'irradiation du couple d'échantillons était bien la somme des signaux obtenus suite à l'irradiation séparée des deux échantillons. Nous avons ensuite vérifié que le rapport des signaux prompt et retardé

déterminé suite à l'irradiation du couple d'échantillons correspondait à la combinaison linéaire des rapports des signaux prompt et retardé obtenus suite à l'irradiation séparée des échantillons, pondérée par les fractions massiques d' ^{235}U et de ^{239}Pu au sein du couple d'échantillons d'uranium et de plutonium. Ces résultats montrent que les effets « d'inter-interrogation » (neutrons de fission émis par un échantillon entraînant à son tour des réactions de fission au sein de l'échantillon voisin) sont négligeables dans le cadre de nos mesures.

2.2.1.2 Calculs de sensibilité

Nous avons comparé les signaux de neutrons prompts déterminés expérimentalement avec ceux obtenus par simulation. Nous avons simulé à l'aide du code MCNPX le taux de fission sur la période temporelle de détection des neutrons prompts (entre 3 ms et 8 ms après l'émission de la particule source), et multiplié ce dernier par le nombre moyen de neutrons prompts émis par réaction de fission thermique (2,42 pour l' ^{235}U et 2,89 pour le ^{239}Pu) et par l'efficacité de détection absolue des neutrons prompts que nous avons déterminée expérimentalement à l'aide d'une source de ^{252}Cf . Le rapport entre les signaux prompts simulés et mesurés est respectivement de 0,68 et de 0,71 pour les échantillons de référence d'uranium et de plutonium. Ces écarts sont en accord avec nos conclusions présentées au second chapitre. La sous-évaluation des sections efficaces photonucléaires du tantale dont l'influence sur l'intensité de l'émission photoneutronique, estimée entre 15% et 30%, serait la cause principale des écarts obtenus entre simulation et mesure des signaux prompts. Notons aussi que le temps de demi-vie des neutrons interrogateurs simulé est inférieur de près de 15% à celui déterminé expérimentalement.

2.2.2 Effets de matrice

À titre d'illustration, la figure 4.30 compare les comptages neutroniques obtenus suite à l'irradiation d'un même échantillon d'uranium enrichi à 9,6%, en position centrée, pour les différentes configurations étudiées : en l'absence de fût et en présence d'un fût vide ou contenant une matrice vinyle ($0,02 \text{ g/cm}^3$), fer ($0,22 \text{ g/cm}^3$), ou polyéthylène ($0,45 \text{ g/cm}^3$). Le bruit de fond actif indiqué est celui mesuré en l'absence de fût. Le temps de demi-vie des neutrons dans la cavité est déduit de la décroissance du signal prompt. Ce dernier est respectivement de $1026 \mu\text{s}$ et $868 \mu\text{s}$ pour les configurations « sans fût » et « fût sans matrice ». Pour les configurations « fût avec matrice vinyle », et « fût avec matrice fer », ce paramètre prend les valeurs suivantes : $750 \mu\text{s}$ et $635 \mu\text{s}$. Nous pouvons ainsi remarquer que le temps de demi-vie des neutrons dans la cavité de mesure diminue lorsque la quantité d'absorbant augmente. Pour le cas de la matrice polyéthylène et pour ce dispositif, le cas de l'échantillon centré constitue le cas le plus pénalisant. Les 100 kg de billes en polyéthylène contenus dans le fût constituent une barrière difficilement pénétrable pour les neutrons thermiques interrogateurs. Cependant, les photoneutrons rapides émis par la cible de conversion atteignant le fût et se thermalisant dans la matrice polyéthylène sont à l'origine d'un faible signal sortant du bruit de fond actif mesuré en présence du fût avec matrice polyéthylène (ce bruit de fond actif n'est pas présenté sur la figure 4.30 pour des raisons de

clarté). Nous pouvons également remarquer que le signal obtenu en présence de la matrice polyéthylène est en deçà du signal correspondant au bruit de fond actif obtenu en l'absence de fût. Le fût étant positionné entre la cible de conversion de l'accélérateur et le bloc de détection neutronique utilisé pour ces mesures, les billes de polyéthylène de la matrice constituent une protection vis-à-vis du bloc de détection en limitant la contribution des photoneutrons rapides émis par la cible au bruit de fond actif et l'impact du flash gamma (phénomène au cours duquel les photons émis par la cible entraînent la saturation provisoire de l'électronique de comptage des neutrons).

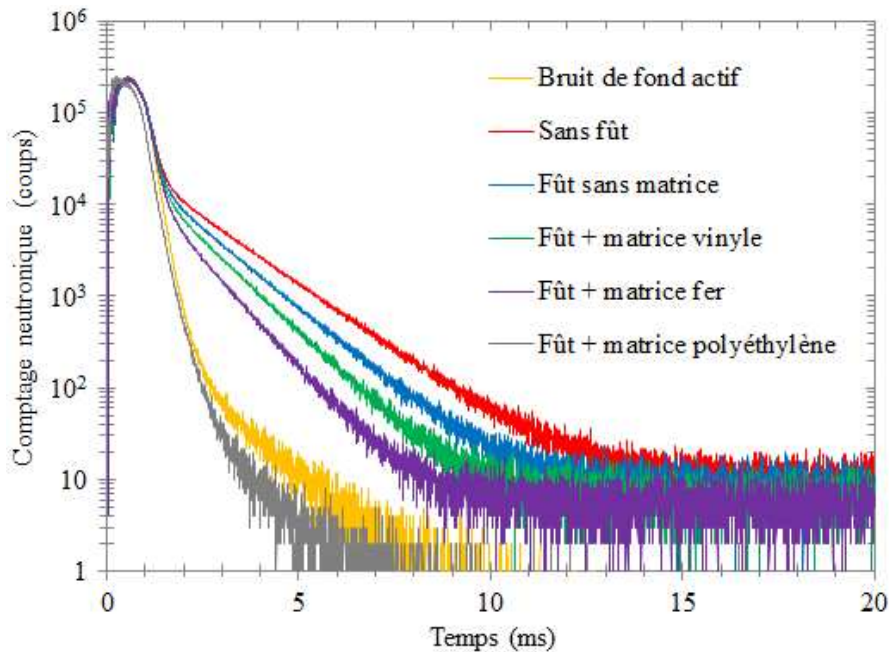


Figure 4.30 : Comptages neutroniques obtenus pour un échantillon d'uranium enrichi à 9,6% en position centrée pour les différentes configurations de mesure.

Nous avons étudié l'évolution du signal prompt en fonction de la masse d' ^{235}U pour les différentes configurations étudiées : en l'absence de fût, et en présence d'un fût vide ou contenant une matrice vinyle ou fer. La figure 4.31 présente ces résultats. Nous pouvons souligner l'excellente linéarité des résultats obtenus. La diminution du coefficient directeur de la droite traduit la baisse de sensibilité avec l'augmentation de la quantité d'absorbant de la matrice. En guise d'exemple, le signal obtenu en l'absence de fût est supérieur d'un facteur trois environ par rapport à celui mesuré en configuration « fût et matrice vinyle ». Les masses limites de détection, calculées à partir de la formule présentée dans la référence [Gmar05], ont été déduites des signaux prompts. Celles-ci sont respectivement de 3 mg, 5 mg, 7 mg, et 16 mg d' ^{235}U , en 10 min, pour les configurations sans fût, avec fût vide, avec fût et matrice vinyle, et avec fût et matrice fer.

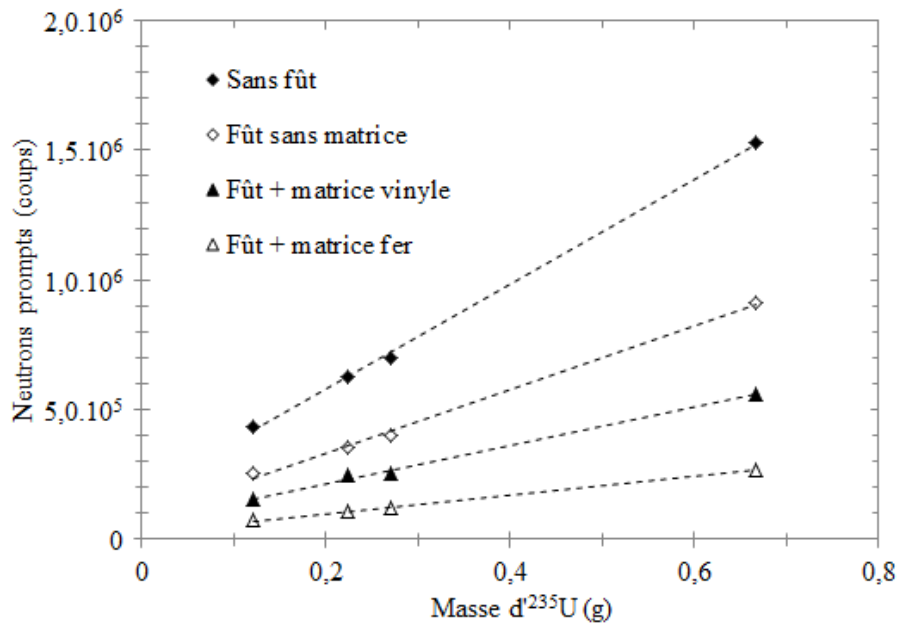


Figure 4.31 : Signaux prompts *versus* masses d'²³⁵U obtenus pour les différentes configurations de mesure.

Nous nous sommes également attachés à étudier les variations du rapport entre signaux prompt et retardé en fonction de la masse d'²³⁵U pour les différentes configurations étudiées. La figure 4.32 présente nos résultats. Pour une configuration donnée, la valeur du rapport est constante en fonction de la masse d'actinides. Cependant, la valeur du rapport évolue de manière importante avec la configuration de mesure considérée. Nous pouvons par exemple remarquer près d'un facteur trois d'écart entre la valeur obtenue pour les échantillons en l'absence de fût (environ 140) et en présence d'un fût rempli d'une matrice fer (environ 50). Cette différence s'explique par la variation du temps de demi-vie des neutrons interrogateurs avec la configuration de mesure.

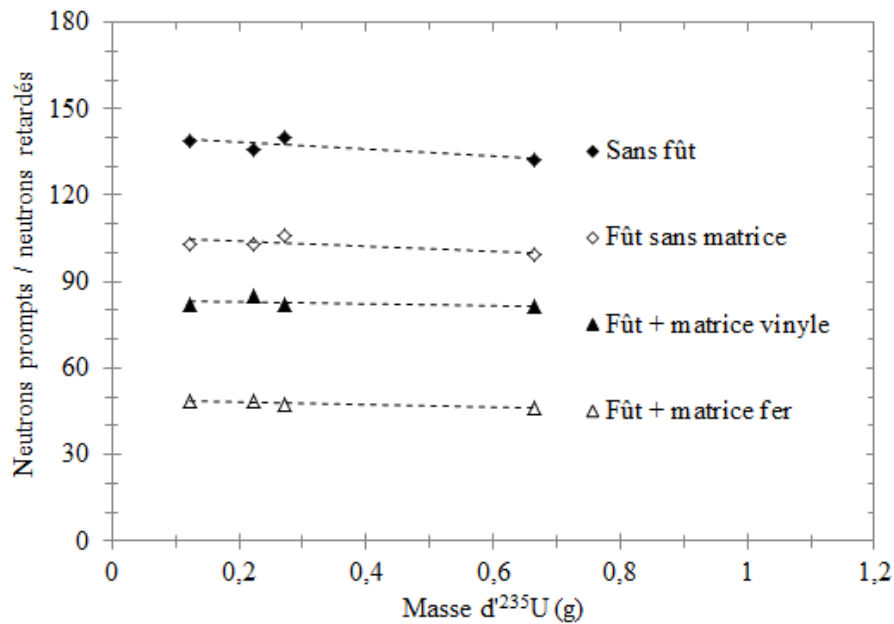


Figure 4.32 : Rapports entre signaux prompt et retardé obtenus en fonction de la masse d' ^{235}U dans différentes configurations de mesure.

2.2.3 Optimisation du flux interrogateur

Nous avons étudié expérimentalement l'évolution des performances de la mesure d'interrogation neutronique active avec la variation des paramètres de la source photoneutronique, à savoir : l'énergie moyenne du spectre d'électrons irradiant la cible, le matériau de la cible, et l'épaisseur de la cible. Nous avons réalisé des mesures pour des électrons de 14 MeV ou 17 MeV d'énergie moyenne, irradiant des cibles de tungstène ou de tantale de haute pureté (99,9% ou plus) allant de 5 mm à 4 cm d'épaisseur. Plusieurs de ces cibles sont visibles sur la figure 4.33. Nous avons retenu la cible de tantale d'1 cm d'épaisseur irradiée par des électrons présentant un spectre en énergie ayant une valeur moyenne de 17 MeV comme source de référence. Cette campagne a été réalisée pour des échantillons d'uranium contenus dans un fût de 220 L contenant une matrice fer.



Figure 4.33 : Cibles de tungstène ou de tantale de différentes épaisseurs (1 cm, 2 cm et 3 cm).

La figure 4.34 présente les signaux prompts en fonction de la masse d' ^{235}U , obtenus avec des électrons ayant une énergie moyenne de 14 MeV ou 17 MeV et irradiant une cible de tantale d'épaisseur 1 cm. Les signaux augmentent linéairement avec la masse d'actinides et d'autant plus rapidement que l'énergie des électrons est élevée. Nous pouvons souligner que le signal obtenu à 17 MeV est supérieur d'un facteur 3,2 en moyenne par rapport à celui mesuré à 14 MeV, ce qui constitue une élévation notable des performances de la mesure. De plus, ce résultat est en très bon accord avec ceux présentés dans le tableau 2.4 du chapitre 2. Pour rappel, nous avons déterminé que les valeurs d'intensités moyennes d'émission photoneutronique d'une cible de tantale épaisse d'1 cm atteignaient $1,89 \cdot 10^{10}$ et $5,98 \cdot 10^{10}$ neutrons par seconde à 14 MeV et 17 MeV respectivement (résultats obtenus avec MCNPX). Ces intensités présentent un facteur d'écart de 3,2.

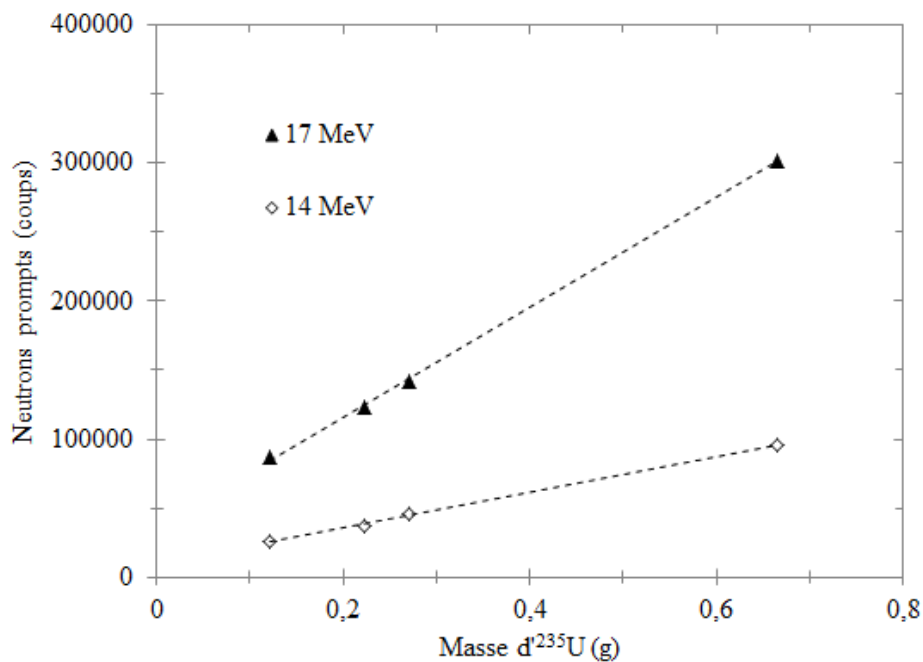


Figure 4.34 : Signaux prompts obtenus en fonction de la masse d' ^{235}U en configuration matrice fer pour deux énergies moyennes du spectre d'électrons (14 MeV et 17 MeV).

La figure 4.35 présente les signaux prompts en fonction de la masse d' ^{235}U , obtenus avec une cible de tantale ou de tungstène, d'épaisseurs 1 cm et irradiées par des électrons de 17 MeV en moyenne. Les signaux augmentent linéairement avec la masse d'actinides et le signal obtenu avec la cible de tungstène est supérieur de 13,6% en moyenne à celui mesuré avec la cible de tantale. Le choix d'une cible de tungstène ou de tantale n'aura donc qu'un impact limité sur les performances de la mesure. En outre, nous avons déterminé précédemment avec les codes de calcul MCNPX et TRIPOLI-4 (figure 2.12, chapitre 2) que les intensités d'émission photoneutronique d'une cible de tungstène étaient supérieures de 21,0% et 18,4% respectivement par rapport à celles d'une cible de tantale (cibles d'épaisseur 1 cm irradiées par des électrons de 17 MeV d'énergie moyenne). L'écart entre simulation et expérience, bien que peu élevé, est probablement lié aux incertitudes élevées des sections efficaces photonucléaires du tungstène et du tantale identifiées au second chapitre.

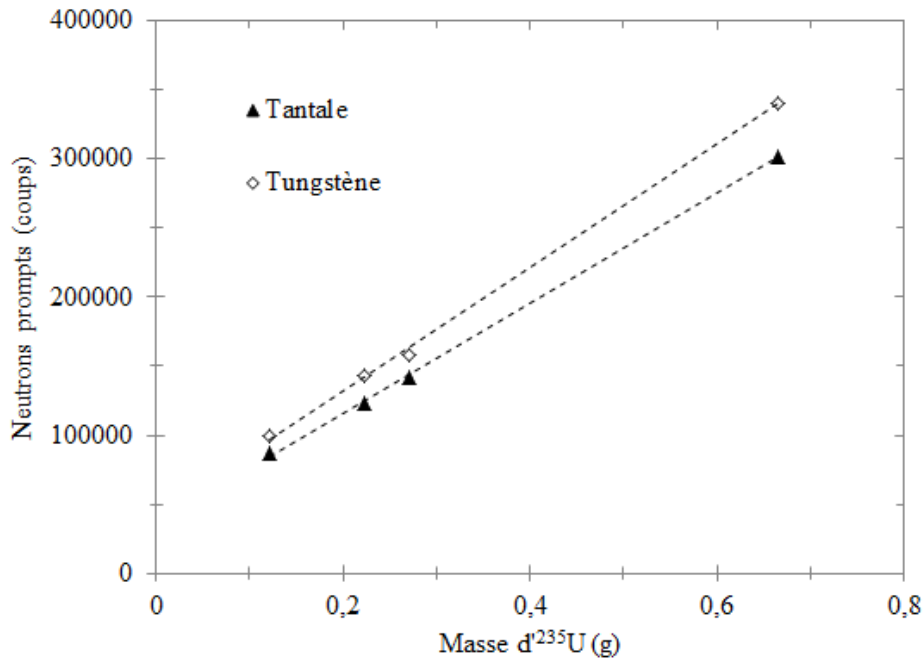


Figure 4.35 : Signaux prompts obtenus en fonction de la masse d'²³⁵U en configuration matrice fer avec une cible de tantalum ou de tungstène.

La figure 4.36 présente les signaux prompts en fonction de la masse d'²³⁵U, obtenus avec des cibles de tantalum d'épaisseurs comprises entre 5 mm et 4 cm, irradiées par des électrons de 17 MeV d'énergie moyenne. Deux commentaires principaux peuvent être effectués. Les signaux augmentent linéairement avec la masse d'actinides et les performances de la mesure augmentent avec l'épaisseur de la cible jusqu'à atteindre un niveau de saturation pour une épaisseur de cible de 3 cm. À titre d'exemple, les signaux mesurés avec les cibles de 5 mm et 4 cm présentent un écart d'un facteur 2,4. L'épaisseur de la cible aura donc un impact important sur les performances du dispositif de mesure. Nous pouvons noter que ces résultats sont en bon accord avec ceux exposés à la figure 2.12 du chapitre 2. Rappelons que la simulation prévoyait une augmentation d'un facteur 2,7 entre les intensités d'émission photoneutronique délivrées par les cibles de 5 mm et 4 cm, et une saturation de l'augmentation à partir de 3 cm.

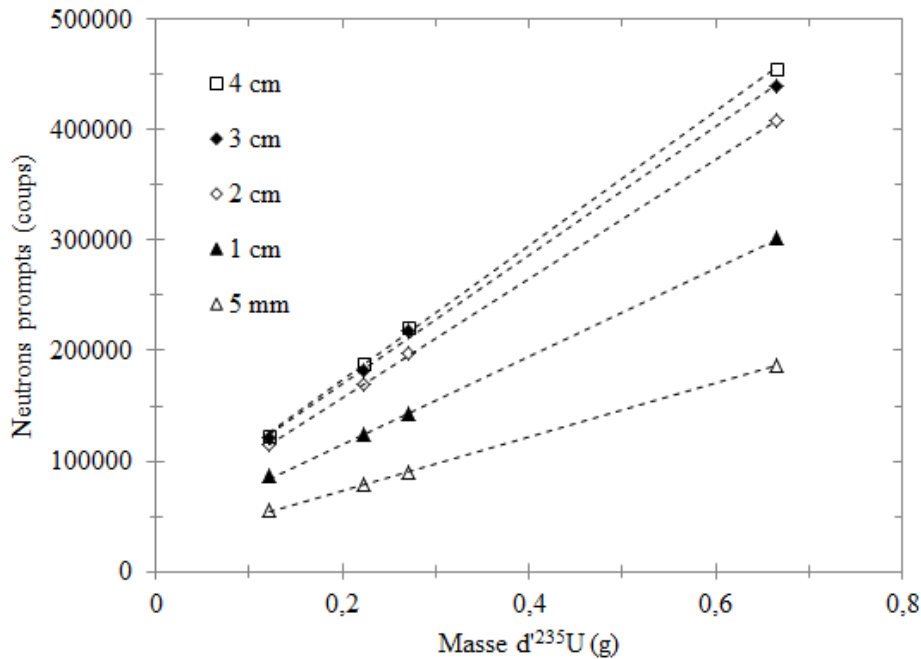


Figure 4.36 : Signaux prompts obtenus en fonction de la masse d'²³⁵U en configuration matrice fer pour différentes épaisseurs de la cible de tantale comprises entre 5 mm et 4 cm.

3. Conclusions

L'objectif de ce chapitre était d'évaluer les performances de la mesure d'interrogation neutronique active réalisée avec un accélérateur d'électrons sur des colis de 220 L. Nous avons ainsi réalisé le dimensionnement d'une cellule de mesure neutronique adaptée à cet usage par simulation MCNPX. La cellule fabriquée suite à notre étude de conception est constituée de parois en polyéthylène de 5 cm d'épaisseur. Nous avons également dimensionné des blocs de détection neutronique destinés à être utilisés pour les mesures d'interrogation neutronique et les mesures d'interrogation photonique actives. Cependant, bien que la conception de blocs polyvalents ait été réalisée, nous avons effectué nos mesures avec les blocs déjà disponibles sur notre installation en raison de contraintes expérimentales. Nous avons d'abord procédé à des expériences sur échantillons en l'absence de fût dans la cellule. Nous avons notamment montré la capacité à différencier expérimentalement l'²³⁵U et le ²³⁹Pu à l'aide du ratio des signaux des neutrons prompts et retardés, et la possibilité de réaliser des simulations dédiées à des calculs de sensibilités pour notre cellule. Nos mesures ont montré que la cellule était caractérisée par un temps de demi-vie des neutrons thermiques interrogateurs de 1026 μ s comparable au temps de demi-vie de 1120 μ s des neutrons thermiques dans la cavité de la cellule de mesure PROMETHEE 6 du CEA Cadarache [Mariani03]. Nous avons ensuite entrepris de réaliser des mesures avec des échantillons centrés au sein de fûts de 220 L avec et sans matrice. Différents types de matrice ont été considérées, à savoir : vinyle, fer, et polyéthylène. Nos résultats ont permis de quantifier l'impact de la matrice sur la sensibilité de la mesure et de montrer la difficulté à discriminer l'²³⁵U et le ²³⁹Pu à l'aide des ratios entre les signaux neutroniques prompt et retardé en

présence d'une matrice (nécessité d'une méthode de correction d'effet de matrice [Raoux08]). Les masses limites de détection ont été déduites des signaux prompts. Nous pouvons détecter, en dix minutes, une masse limite d' ^{235}U comprise entre 3 mg et 16 mg en fonction de la configuration de mesure considérée (présence ou absence du fût, nature et masse volumique de la matrice contenue dans le fût).

Nous avons étudié expérimentalement l'évolution entre les caractéristiques de la cible de conversion et les performances de la mesure en configuration matrice fer. Nous avons utilisé des cibles de tantale et de tungstène, d'épaisseurs comprises entre 5 mm et 4 cm, et irradiées par des électrons de 14 MeV ou 17 MeV d'énergie moyenne. Nous avons montré que les performances peuvent être significativement améliorées en augmentant l'énergie des électrons ou l'épaisseur de la cible. De plus, ces mesures ont permis de valider plusieurs résultats de simulation exposés au chapitre 2. Remarquons cependant que l'emploi de blocs de détection neutronique optimisés pour la détection des neutrons prompts de fission thermique, tels que ceux que nous avons dimensionnés par simulation, permettrait d'augmenter encore les performances de notre dispositif notamment en termes de masses limites de détection. Notre cellule est conçue de manière à pouvoir transférer le fût dans une configuration optimisée pour la mesure complémentaire d'interrogation photonique active. Dans notre approche, les mesures d'interrogation photonique et neutronique actives étant réalisées de manière séparée, il est ainsi possible d'équiper l'accélérateur avec une cible optimisée pour chacune des deux mesures. L'étude de l'association des résultats de mesures d'interrogation neutronique et photonique actives sur des fûts de 220 L contenant différents types de matrices constitueraient une suite logique à nos travaux.

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

L'objectif de ce projet de recherche était d'évaluer le potentiel d'un accélérateur d'électrons pour réaliser des mesures d'interrogation neutronique active dans le cadre de la caractérisation radiologique de colis de déchets radioactifs. Le premier axe de recherche était dédié à la caractérisation et à l'optimisation du flux de photoneutrons émis par un accélérateur d'électrons. Deux codes de calcul — MCNPX et TRIPOLI-4 — ont été utilisés au cours de cette étude. Nos travaux, au cours desquels une collaboration avec l'équipe de développement du code TRIPOLI-4 a été mise en place, ont contribué à l'amélioration de la fiabilité de ce code de calcul pour la production des photoneutrons et à l'identification d'erreurs de seuils de sections efficaces photonucléaires rencontrées avec le code MCNPX. Le flux de photoneutrons a été caractérisé en termes de spectre en énergie, de distribution angulaire, et d'intensité moyenne d'émission. Nous avons montré que le spectre en énergie des photoneutrons est un spectre de Maxwell-Boltzmann dont le maximum est situé vers 0,5 MeV. L'énergie moyenne du spectre est d'environ 1 MeV. Nous avons montré que les photoneutrons sont émis de manière isotrope et avons quantifié l'impact des effets de géométrie de la cible sur cette distribution. L'intensité moyenne d'émission est de l'ordre de 10^{11} neutrons par seconde. Cette intensité est de l'ordre de cent fois supérieure par rapport à celle fournie par le générateur deutérium-tritium GENIE 36 fabriqué par EADS Sodern, générateur actuellement présent sur des installations industrielles d'interrogation neutronique active dédiées à la caractérisation de colis de déchets radioactifs. Notre étude d'optimisation du flux de photoneutrons a montré qu'une cible de 3 cm d'épaisseur constitue un bon compromis entre maximisation de la production photoneutronique, anisotropie de la distribution angulaire, et minimisation de la production des photons parasites ayant une énergie supérieure à 6 MeV. Nous avons ensuite développé une méthode basée sur l'utilisation d'un détecteur à activation et pour l'évaluation des caractéristiques du flux de photoneutrons. Nous avons appliqué cette méthode à la caractérisation du flux neutronique délivré par deux accélérateurs d'électrons (accélérateur d'électrons de l'installation SAPHIR et accélérateur médical *General Electric* du Laboratoire National Henri Becquerel). Cette méthode a notamment permis de montrer que les sections efficaces photonucléaires du tungstène et du tantale sont sous-évaluées, ce qui conduit à sous-estimer de 15% à 30% l'intensité de l'émission photoneutronique pour des énergies moyennes d'électrons de 14 MeV ou 17 MeV.

Le second axe de recherche avait pour objectif de démontrer la faisabilité, avec un accélérateur d'électrons, de l'interrogation neutronique active « pure », c'est-à-dire sans contribution parasite de la photofission. Nous nous sommes intéressés à la détection des neutrons prompts et retardés émis par différents échantillons d'uranium ou de plutonium, ainsi qu'à la détection des gamma retardés. Une étude complémentaire par simulation MCNPX a permis de montrer que les effets d'autoprotection et d'auto-absorption avaient un impact important sur nos échantillons, et que ces effets devaient être pris en compte afin d'interpréter les signaux mesurés. Nous avons calculé de manière théorique les rapports entre signaux

prompts et retardés de fission thermique. Nos résultats sont en accord avec les valeurs obtenues expérimentalement. Les résultats issus de la détection des gamma retardés ont permis de confirmer les résultats obtenus via la détection des neutrons prompts et retardés. Les différents types de mesures réalisées ont permis de démontrer que les échantillons subissent majoritairement une interrogation neutronique de nature thermique au sein de la cellule. L'association des résultats de mesures non simultanées d'interrogation neutronique et photonique actives, avec un unique accélérateur d'électrons, a été réalisée au cours de cette étude. Nous avons appliqué cette méthode à la mesure de l'enrichissement de l'uranium.

L'objectif du troisième et dernier axe de recherche était de dimensionner une cellule de mesure neutronique basée sur un accélérateur d'électrons par simulation MCNPX, et d'évaluer les performances de la mesure d'interrogation neutronique active sur des colis maquettes de 220 L. La cellule fabriquée suite à cette étude de conception est caractérisée par un temps de demi-vie des neutrons thermiques interrogateurs dans la cavité vide de 1026 μs . À titre de comparaison, ce paramètre est de 1120 μs pour la cellule de mesure PROMETHEE 6 du CEA Cadarache. Nous avons ensuite entrepris de réaliser des mesures avec des échantillons centrés au sein de fûts de 220 L, avec et sans matrice. Nos résultats ont permis de quantifier l'impact important de la matrice sur la sensibilité de la mesure des neutrons prompts de fission thermique et sur le ratio des signaux neutroniques prompt et retardé. Nous avons déduit les masses limites de détection des signaux prompts. La masse limite d' ^{235}U détectable en dix minutes est comprise entre 3 mg et 16 mg en fonction de la configuration de mesure considérée³ (présence ou absence du fût, nature et masse volumique de la matrice contenue dans le fût). Il est important de souligner que ces performances ont été obtenues avec un dispositif de détection très réduit (un bloc de détection contenant trois détecteurs ^3He). Une cellule industrielle pour des colis FA/MA de 100 L à 220 L comporte traditionnellement une centaine de détecteurs ^3He . Nous avons étudié expérimentalement l'évolution entre les caractéristiques de la cible de conversion et les performances de la mesure dans une configuration pénalisante : échantillon placé au centre d'un fût contenant une matrice en fer de 0,22 g/cm^3 . Nous avons montré que les performances pouvaient être améliorées de manière significative en augmentant l'énergie des électrons irradiant la cible ou l'épaisseur de cette dernière. Ces mesures ont notamment permis de valider plusieurs résultats de simulation exposés au second chapitre. Remarquons cependant que l'emploi de blocs de détection neutronique optimisés pour la détection des neutrons prompts de fission thermique, tels que ceux que nous avons dimensionnés par simulation au quatrième chapitre,

³ Ces masses limites de détection sont en réalité sous-estimées compte tenu de l'impact des effets d'autoprotection sur les échantillons utilisées pour la déduction de ces valeurs à partir des signaux prompts expérimentaux.

permettrait d'abaisser davantage les masses limites de détection de notre cellule. Le passage en configuration de mesure d'interrogation photonique active a été pris en compte dans notre dimensionnement de cellule. Dans notre approche, les mesures d'interrogation photonique et neutronique actives sont réalisées de manière séparée, ce qui permet d'utiliser une cible de conversion optimisée pour chacune des deux mesures : une cible de 3 cm d'épaisseur pour la mesure d'interrogation neutronique active et une cible de 1,7 mm d'épaisseur irradiée par des électrons de 15 MeV pour la mesure d'interrogation photonique active. Les résultats obtenus par les mesures d'interrogation photonique et neutronique actives permettraient d'ajuster les modèles de simulation utilisées lors d'études de caractérisation de colis. Des méthodes d'analyse de type *Expectation-Maximization* pourraient être utilisées [Shepp82]. Enfin, nous avons mis au point une cellule de mesure fonctionnelle, adaptée à l'analyse de colis de type 220 L. Une suite logique à nos travaux consisterait à évaluer les performances d'une telle cellule sur un colis de déchets réels.

Dans le cadre de ce travail de thèse, nous avons donc utilisé un accélérateur d'électrons comme source de photoneutrons en lieu et place d'un générateur de type deutérium-tritium pour réaliser des mesures par interrogation neutronique active. Nous avons ainsi démontré le potentiel d'un accélérateur d'électrons pour être utilisé sur une plateforme polyvalente de contrôle des colis de déchets radioactifs. La mutualisation, autour d'une telle plateforme, des techniques d'imagerie photonique haute énergie et d'interrogations neutronique et photonique actives non simultanées, permettraient d'apporter davantage d'informations sur les colis, d'abaisser les incertitudes des mesures, de corriger les effets de matrice, tout en limitant les coûts de la caractérisation (mutualisation des dispositifs de détection neutronique entre INA et IPA par exemple). Ainsi :

- d'un point de vue qualitatif, l'imagerie photonique haute énergie permettrait de mettre en évidence des effets de matrice et de vérifier le niveau de remplissage des colis ;
- d'un point de vue quantitatif, l'imagerie photonique haute énergie permettrait de réaliser un examen tomographique des colis ;
- la mesure par interrogation neutronique active pourrait être centrée sur la détermination de la masse fissile contenue dans les colis;
- la mesure par interrogation photonique active pourrait être centrée sur la détermination de la masse fertile contenue dans les colis.

Finalement, suite à ces travaux, nous pouvons tirer les recommandations suivantes pour la poursuite du développement de la mesure par interrogation neutronique active avec un accélérateur d'électrons comme source de neutrons :

- Utiliser une cible de conversion en tantale afin de s'affranchir des erreurs sur les seuils de sections efficaces de production (γ, xn) du ^{182}W , ^{184}W , et ^{186}W , qui sont à l'origine d'une sous-estimation de la production photoneutronique par simulation. Dans le cas où l'intensité d'émission photoneutronique la plus élevée possible est souhaitée, utiliser une cible de conversion en tungstène. Dans ce cas, déterminer la

production photoneutronique par simulation à partir de la somme des taux de réactions (γ, n) et $(\gamma, 2n)$ en incluant une pondération d'un facteur deux pour le taux de réaction $(\gamma, 2n)$.

- Réévaluer les sections efficaces photonucléaires du tungstène et du tantale dans la gamme d'énergie d'intérêt afin d'affiner les calculs d'intensité d'émission photoneutronique provenant des cibles de conversion.
- Réaliser les mesures par interrogations neutronique et photoniques actives séparément — en utilisant les mêmes blocs de détection neutronique⁴ — afin de permettre l'utilisation d'une cible de conversion adaptée pour chacune des deux mesures. Utiliser une cible de conversion de 3 cm d'épaisseur pour la mesure par interrogation photonique active afin de maximiser la production photoneutronique et limiter l'émission de photons de plus de 6 MeV. Utiliser une cible de conversion en tungstène d'1,7 mm d'épaisseur irradiée par des électrons de 15 MeV pour la mesure par interrogation photonique active afin de maximiser la production de photons de plus de 6 MeV et limiter l'émission de photoneutrons. Nous recommandons de réaliser la mesure par interrogation photonique active en l'absence de cellule thermalisante afin de s'affranchir de la production de photoneutrons thermiques parasites durant cette mesure.
- Pour la mesure par interrogation neutronique active, protéger les blocs de détection contre les rayonnements photoniques provenant de la cible de conversion afin de réduire l'impact du flash gamma, et contre les neutrons épithermiques afin de réduire le bruit de fond actif et détecter ainsi les neutrons prompts de fission thermique plus précocement.

⁴ Au cours de notre étude de conception par simulation, présentée au quatrième chapitre, nous avons dimensionnés des blocs de détection polyvalents en termes de temps de demi-vie des neutrons rapides dans les blocs, d'efficacités des neutrons prompts et retardés de fission thermique, d'efficacité de détection des neutrons retardés de photofission (absence de la cellule en polyéthylène dans la configuration dédiée à la mesure par interrogation photonique active).

ANNEXE 1 : EXPRESSION THEORIQUE DU SIGNAL DES GAMMA DE DESACTIVATION

En notant $\tau_{(\gamma,n)}$ le taux de réaction (γ , n) par seconde et λ la constante de décroissance radioactive (s^{-1}), l'équation différentielle décrivant le nombre de noyaux radioactifs formés dans l'échantillon au cours du temps, pendant la phase d'irradiation, s'exprime de la manière suivante :

$$\frac{dN}{dt} = \tau_{(\gamma,n)} - \lambda N$$

La solution de l'équation précédente donnant le nombre de noyaux radioactifs produits à un temps t au cours de l'irradiation s'écrit :

$$N(t) = \frac{\tau_{(\gamma,n)}}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t})$$

Une fois l'irradiation terminée, l'activité de l'échantillon décroît. La désintégration des noyaux radioactifs peut être décrite par l'équation différentielle suivante :

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N(t)$$

N_0 étant le nombre de noyaux radioactifs présents à la fin de l'irradiation, la solution de l'équation précédente donne le nombre de noyaux radioactifs restant après irradiation à un temps t et s'écrit :

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t}$$

Le nombre de noyaux radioactifs formés à la fin de la première impulsion d'irradiation de durée t_{irr} s'exprime de la manière suivante :

$$N(t_{irr}) = \frac{\tau_{(n,\gamma)}}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_{irr}})$$

Compte tenu du fait que la durée de l'impulsion est très courte devant la période du noyau ($\lambda t_{irr} \ll 1$), un développement limité au premier ordre en 0 peut être appliqué à la fonction exponentielle. L'équation précédente est donc simplifiée :

$$N(t_{irr}) = \tau_{(n,\gamma)} t_{irr}$$

En notant T la période de l'impulsion, le nombre de noyaux radioactifs présents avant le début de la seconde impulsion s'écrit :

$$N(T) = \tau_{(n,\gamma)} e^{-\lambda T} t_{irr}$$

Après n impulsions de durée t_{irr} , générées à la période T , le nombre de noyaux radioactifs s'exprime comme suit :

$$N(nt_{irr}) = \tau_{(n,\gamma)} \sum_{i=0}^{n-1} e^{-i\lambda T} t_{irr}$$

La somme des n premiers termes de la suite géométrique, de premier terme 1 et de raison $e^{-\lambda T}$, peut être réécrite sous la forme suivante :

$$\sum_{i=0}^{n-1} e^{-i\lambda T} = \frac{1 - e^{-n\lambda T}}{1 - e^{-\lambda T}}$$

Le nombre de noyaux radioactifs présents à la fin de la période globale de tir de durée nt_{irr} peut donc se réécrire :

$$N(nt_{irr}) = \tau_{(n,\gamma)} \frac{1 - e^{-n\lambda T}}{1 - e^{-\lambda T}} t_{irr}$$

Le nombre de noyaux radioactifs restant à la fin de la période de refroidissement de durée T_{ref} est égal à :

$$N(T_{ref}) = \tau_{(n,\gamma)} \frac{1 - e^{-n\lambda T}}{1 - e^{-\lambda T}} t_{irr} e^{-\lambda T_{ref}}$$

La surface du pic d'intérêt S_γ due aux émissions gamma suivant la désactivation de noyaux radioactifs peut être calculée connaissant p la probabilité de l'émission du photon et ε l'efficacité absolue de détection de ce dernier. Dans la formule suivante, T_c représente la durée de comptage et $A(t)$ l'activité des noyaux radioactifs au cours du temps.

$$S_\gamma = p \varepsilon \int_0^{T_c} A(t) dt = p \varepsilon \lambda \int_0^{T_c} N(t) dt$$

$N(t = T_{ref})$ représentant le nombre de noyaux radioactifs restant au départ de la phase d'acquisition, la formule précédente peut être réécrite sous la forme :

$$S_\gamma = p \varepsilon \lambda N(t = T_{ref}) \int_0^{T_c} e^{-\lambda t} dt$$

Après intégration, il vient :

$$S_\gamma = p \varepsilon N(t = T_{ref}) (1 - e^{-\lambda T_c})$$

Enfin, l'écriture finale de S_γ est obtenue en remplaçant $N(t = T_{ref})$:

$$S_\gamma = p \varepsilon \tau_{(n,\gamma)} \frac{1 - e^{-n\lambda T}}{1 - e^{-\lambda T}} t_{irr} e^{-\lambda T_{ref}} (1 - e^{-\lambda T_c})$$

Il est important de souligner que le résultat d'un calcul de taux de réaction (n,γ) réalisé avec MCNPX est normalisé par électron incident. Nous devons ainsi multiplier ce résultat par l'intensité crête du courant d'électrons délivrée par l'accélérateur (nombre

d'électrons par seconde) de manière à ce que $\tau_{(n,\gamma)}$ soit exprimé dans l'unité adaptée (nombre de réaction (n, γ) par seconde).

ANNEXE 2 : EXPRESSION THEORIQUE DU SIGNAL DES NEUTRONS PROMPTS

En première approximation, la valeur instantanée du signal prompt utile (en coups par seconde) s'écrit :

$$S_u(t) = \tau_{fis}(t) \nu_p \varepsilon_p$$

Dans cette équation, $\tau_{fis}(t)$ représente le taux de fission instantané (en fissions par seconde), ν_p le nombre moyen de neutrons prompts émis par fission et ε_p l'efficacité de détection absolue des neutrons prompts. Durant la phase de comptage des neutrons prompts, le flux thermique interrogateur décroît exponentiellement. En notant τ_0 le taux de fission extrapolé à l'origine des temps prise comme étant la fin du tir du générateur de neutrons ou du LINAC (en fissions par seconde) et λ_c la constante de décroissance du flux dans la cellule, le taux de fission instantané peut se décomposer comme suit :

$$\tau_{fis}(t) = \tau_0 e^{-\lambda_c t}$$

Nous pouvons souligner que τ_0 (en fissions par seconde) est proportionnel à la masse m de l'isotope fissile (en grammes) selon l'expression suivante où : A est son nombre de masse (en g.mol⁻¹), \mathcal{N}_A la constante d'Avogadro, σ_f la section efficace microscopique de fission moyenne sur le spectre en énergie des neutrons pendant la phase de comptage (en cm²) et ϕ_0 le flux neutronique moyen pendant la phase de comptage dans l'objet extrapolé à l'origine (en n.cm⁻².s⁻¹) :

$$\tau_0 = \frac{m}{A} \mathcal{N}_A \sigma_f \phi_0$$

La valeur instantanée du signal utile (en coups par seconde) peut ainsi être écrite comme suit :

$$S_u(t) = \tau_0 \nu_p \varepsilon_p e^{-\lambda_c t}$$

En notant t_1 et t_2 les bornes temporelles de la phase de comptage, le signal devient :

$$S_u = \frac{\tau_0 \nu_p \varepsilon_p}{t_2 - t_1} \int_{t_1}^{t_2} e^{-\lambda_c t} dt$$

Le signal prompt utile (en coups par seconde) vaut alors :

$$S_u = \frac{\tau_0 \nu_p \varepsilon_p [e^{-\lambda_c t_1} - e^{-\lambda_c t_2}]}{\lambda_c (t_2 - t_1)}$$

Ce qui permet d'écrire le nombre de neutrons prompts détectés (S_{pr}) sous la forme :

$$S_{pr} = \frac{\tau_0 \nu_p \varepsilon_p [e^{-\lambda_c t_1} - e^{-\lambda_c t_2}]}{\lambda_c}$$

Enfin, en présence de plusieurs actinides, il convient de sommer les contributions individuelles de chacun des isotopes. Ainsi, pour un mélange à k actinides, la formule précédente peut être généralisée :

$$S_{pr} = \sum_{i=1}^k \frac{\tau_{0,i} \nu_{p,i} \varepsilon_p [e^{-\lambda_c t_1} - e^{-\lambda_c t_2}]}{\lambda_c}$$

ANNEXE 3 : EXPRESSION THEORIQUE DU SIGNAL DES NEUTRONS RETARDES

L'équation différentielle régissant l'évolution au cours du temps du nombre N_i de noyaux émetteurs de neutrons retardés est la suivante :

$$\frac{dN_i}{dt} = \tau_{fis} \beta_i \nu_r - \lambda_i N_i$$

Dans l'équation précédente, τ_{fis} correspond au taux de fission (en fissions par seconde), β_i au nombre de neutrons retardés du groupe i émis par neutron de fission, ν_r au nombre moyen de neutrons émis par fission, λ_i à la constante de décroissance des précurseurs du groupe i (exprimé par seconde). Le taux de fission (en fissions par seconde) s'écrit :

$$\tau_{fis} = \frac{m}{A} \mathcal{N}_A \int_{E=0}^{E_{max}} \sigma_f(E) \phi(E) dE$$

Dans cette équation, m correspond à la masse de l'isotope fissile (en grammes), A au nombre de masse (en g.mol⁻¹), \mathcal{N}_A à la constante d'Avogadro, $\sigma_f(E)$ représente la section efficace microscopique de fission à l'énergie E (en cm²), $\phi(E)$ correspond au flux de neutrons à l'énergie E dans l'objet moyenné pendant la phase d'irradiation (en n.cm⁻².s⁻¹), et E_{max} à l'énergie maximale des neutrons (en MeV).

Après une impulsion de durée t_{irr} , le nombre de noyaux précurseurs s'écrit :

$$N_i(t_{irr}) = \frac{\tau_{fis} \beta_i \nu_r}{\lambda_i} [1 - e^{-\lambda_i t_{irr}}]$$

Après un temps de refroidissement t_{ref} , le nombre de noyaux restant vaut :

$$N_i(t_{irr}, t_{ref}) = \frac{\tau_{fis} \beta_i \nu_r}{\lambda_i} [1 - e^{-\lambda_i t_{irr}}] e^{-\lambda_i t_{ref}}$$

En notant ε_r l'efficacité de détection absolue des neutrons retardés et t_c la durée de la période de comptage, le nombre de neutrons retardés détectés après la première impulsion (notée p_1) s'écrit :

$$N_{ret}(p_1) = \frac{\tau_{fis} \beta_i \nu_r \varepsilon_r}{\lambda_i} [1 - e^{-\lambda_i t_{irr}}] e^{-\lambda_i t_{ref}} [1 - e^{-\lambda_i t_c}]$$

A l'issue de la seconde impulsion (notée p_2), le nombre de neutrons retardés détectés est dû aux noyaux précurseurs créés durant la première et la seconde impulsion. En notant τ la période des impulsions, l'équation s'écrit :

$$N_{ret}(p_2) = \frac{\tau_{fis} \beta_i \nu_r \varepsilon_r}{\lambda_i} [1 - e^{-\lambda_i t_{irr}}] e^{-\lambda_i t_{ref}} [1 - e^{-\lambda_i t_c}] [1 + e^{-\lambda_i \tau}]$$

En généralisant cette expression, le nombre de neutrons retardés déterminé à l'issue de la $k^{\text{ième}}$ impulsion est :

$$N_{ret}(p_k) = \frac{\tau_{fis} \beta_i \nu_r \varepsilon_r}{\lambda_i} [1 - e^{-\lambda_i t_{irr}}] e^{-\lambda_i t_{ref}} [1 - e^{-\lambda_i t_c}] \sum_{j=0}^{k-1} e^{-j \lambda_i \tau}$$

Dans l'équation précédente, la somme des termes de la suite géométrique peut se réécrire comme suit :

$$\sum_{j=0}^{k-1} e^{-j \lambda_i \tau} = \frac{1 - e^{-k \lambda_i \tau}}{1 - e^{-\lambda_i \tau}}$$

Nous pouvons donc écrire que :

$$N_{ret}(p_k) = \frac{\tau_{fis} \beta_i \nu_r \varepsilon_r}{\lambda_i} [1 - e^{-\lambda_i t_{irr}}] e^{-\lambda_i t_{ref}} [1 - e^{-\lambda_i t_c}] \frac{1 - e^{-k \lambda_i \tau}}{1 - e^{-\lambda_i \tau}}$$

Le nombre total de neutrons retardés détectés est égal à la somme des neutrons retardés détectés à chaque période de comptage. En notant n le nombre de périodes, l'équation devient alors :

$$N_{ret} = \frac{\tau_{fis} \beta_i \nu_r \varepsilon_r}{\lambda_i} [1 - e^{-\lambda_i t_{irr}}] e^{-\lambda_i t_{ref}} [1 - e^{-\lambda_i t_c}] \sum_{k=1}^n \frac{1 - e^{-k \lambda_i \tau}}{1 - e^{-\lambda_i \tau}}$$

En notant que $\omega_i = e^{-\lambda_i \tau}$, la somme précédente peut s'écrire sous la forme :

$$\sum_{k=1}^n \frac{1 - e^{-k \lambda_i \tau}}{1 - e^{-\lambda_i \tau}} = \frac{[(n+1)(1 - \omega_i) - (1 - \omega_i^{n+1})]}{(1 - \omega_i)^2}$$

Le nombre de neutrons retardés détectés émis par les noyaux précurseurs de l'ensemble des six groupes vaut donc :

$$S_{ret} = \tau_{fis} \varepsilon_r \sum_{i=1}^6 \frac{\beta_i \nu_r}{\lambda_i} [1 - e^{-\lambda_i t_{irr}}] e^{-\lambda_i t_{ref}} [1 - e^{-\lambda_i t_c}] \frac{[(n+1)(1 - \omega_i) - (1 - \omega_i^{n+1})]}{(1 - \omega_i)^2}$$

Enfin, dans le cas d'un mélange à k actinides, il convient de sommer les contributions individuelles de chaque isotope :

$$S_{ret} = \sum_{j=1}^k \tau_{fis,j} \varepsilon_r \sum_{i=1}^6 \frac{\beta_{i,j} \nu_{r,j}}{\lambda_{i,j}} [1 - e^{-\lambda_{i,j} t_{irr}}] e^{-\lambda_{i,j} t_{ref}} [1 - e^{-\lambda_{i,j} t_c}] \frac{[(n+1)(1 - \omega_{i,j}) - (1 - \omega_{i,j}^{n+1})]}{(1 - \omega_{i,j})^2}$$

ANNEXE 4 : EXPRESSION THEORIQUE DU SIGNAL DES GAMMA RETARDES

Nous considérons deux noyaux, le noyau père et le noyau fils⁵, dans le cas où le temps de demi-vie des noyaux précurseurs est court en comparaison de ceux des noyaux père et fils. En notant τ_{fis} le taux de (photo)fission (en fissions par seconde), Y_c^p le taux de production cumulé⁶ du noyau père par (photo)fission, Y_i^f le taux de production indépendant du noyau fils par (photo)fission, et t_{irr} la durée de l'impulsion délivrée par l'accélérateur (en secondes), les nombres de noyaux père et fils formés après l'impulsion s'écrivent :

$$\begin{cases} N_p(t_{irr}) = \tau_{fis} Y_c^p t_{irr} \\ N_f(t_{irr}) = \tau_{fis} Y_i^f t_{irr} \end{cases}$$

En notant T la période de l'impulsion, le nombre de noyaux fils formés avant le début de la seconde impulsion s'écrit :

$$N_f(T) = \tau_{fis} t_{irr} \left[Y_i^f e^{-\lambda_f T} + Y_c^p \frac{\lambda_p}{\lambda_f - \lambda_p} (e^{-\lambda_p T} - e^{-\lambda_f T}) \right]$$

En notant n le nombre d'impulsions, ce nombre devient :

$$N_f(nt_{irr}) = \tau_{fis} t_{irr} \left[Y_i^f \frac{1 - e^{-n\lambda_f T}}{1 - e^{-\lambda_f T}} + Y_c^p \frac{\lambda_p}{\lambda_f - \lambda_p} \left(\frac{1 - e^{-n\lambda_p T}}{1 - e^{-\lambda_p T}} - \frac{1 - e^{-n\lambda_f T}}{1 - e^{-\lambda_f T}} \right) \right]$$

La somme des n premiers termes de la suite géométrique de premier terme 1 et de raison $e^{-\lambda T}$ peut être réécrite sous la forme suivante :

$$\sum_{i=0}^{n-1} e^{-i\lambda T} = \frac{1 - e^{-n\lambda T}}{1 - e^{-\lambda T}}$$

Après un temps de refroidissement de durée T_{ref} (en secondes), le nombre de noyaux fils est :

⁵ Noyau père : noyau précurseur direct du noyau fils. Noyau fils : noyau émetteur du gamma retardé d'intérêt.

⁶ Taux de production indépendant : taux de production du noyau X obtenu suite à sa création directe par la réaction de fission. Taux de production cumulé : somme des taux de production indépendants des noyaux précurseurs du noyau X.

$$\begin{aligned}
& N_f(nt_{irr}, T_{ref}, t) \\
&= \tau_{fis} t_{irr} \left[Y_i^f \frac{1 - e^{-n\lambda_f T}}{1 - e^{-\lambda_f T}} e^{-\lambda_f T_{ref}} e^{-\lambda_f t} \right. \\
&\quad \left. + Y_c^p \frac{\lambda_p}{\lambda_f - \lambda_p} \left(\frac{1 - e^{-n\lambda_p T}}{1 - e^{-\lambda_p T}} e^{-\lambda_p T_{ref}} e^{-\lambda_p t} - \frac{1 - e^{-n\lambda_f T}}{1 - e^{-\lambda_f T}} e^{-\lambda_f T_{ref}} e^{-\lambda_f t} \right) \right]
\end{aligned}$$

En notant T_{compt} la durée de comptage (en secondes), l'aire nette $S(E_\gamma)$ d'une raie correspondant à la décroissance des noyaux fils s'écrit :

$$S(E_\gamma) = K_\gamma \int_0^{T_{compt}} A_f(t) dt = K_\gamma \lambda_f \int_0^{T_{compt}} N_f(nt_{irr}, T_{ref}, t) dt$$

Enfin, en notant p_γ la probabilité d'émission du photon gamma et ε_γ l'efficacité absolue de détection du photon, nous pouvons écrire l'aire nette sous la forme suivante :

$$\begin{aligned}
S(E_\gamma) &= \tau_{fis} p_\gamma \varepsilon_\gamma t_{irr} \left\{ Y_i^f \left(\frac{1 - e^{-n\lambda_f T}}{1 - e^{-\lambda_f T}} \right) e^{-\lambda_f T_{ref}} (1 - e^{-\lambda_f T_{compt}}) \right. \\
&\quad \left. + Y_c^p \frac{\lambda_f}{\lambda_f - \lambda_p} \left[\left(\frac{1 - e^{-n\lambda_p T}}{1 - e^{-\lambda_p T}} \right) e^{-\lambda_p T_{ref}} (1 - e^{-\lambda_p T_{compt}}) \right] \right. \\
&\quad \left. - Y_c^p \frac{\lambda_p}{\lambda_f - \lambda_p} \left[\left(\frac{1 - e^{-n\lambda_f T}}{1 - e^{-\lambda_f T}} \right) e^{-\lambda_f T_{ref}} (1 - e^{-\lambda_f T_{compt}}) \right] \right\}
\end{aligned}$$

ANNEXE 5 : CALCUL DE MASSES A LA LIMITE DE DETECTION

La limite de détection (LD, en coups par seconde) est le taux de comptage le plus faible obtenu pour actinide donné qui permette de distinguer la présence de l'absence de cet actinide avec une certaine probabilité notée p . La masse à la limite de détection (MLD, en grammes) représente la masse la plus faible de l'actinide détectable avec la probabilité p . Nous posons $p = 97,5\%$ et supposons que le bruit de fond essentiellement de nature radioactive suit une distribution de Poisson. En notant b_a et b_p respectivement les bruits de fond actif et passif (en nombre de coups), T_c , T_a et T_p respectivement les temps de comptage du signal utile, du bruit de fond actif, et du bruit de fond passif (en secondes), la limite de détection (notée LD et exprimée en coups par secondes) s'écrit [Gmar05] :

$$LD = 4 \left[\frac{1}{T_c} + \sqrt{b_a \left(\frac{1}{T_c} + \frac{1}{T_a} \right) + b_p \left(\frac{1}{T_c} + \frac{1}{T_p} \right)} \right]$$

En pratique, nous calculons la limite de détection (en coups par seconde) à l'aide de la formule précédente, et déterminons la sensibilité de la mesure (en nombre de coups par seconde et par gramme) en divisant le signal net obtenu sur la zone prompte du comptage neutronique par la masse de l'échantillon et le temps de comptage (150 secondes pour un comptage des neutrons prompts entre 3 ms et 8 ms après l'impulsion pendant 30000 cycles, soit pendant 10 min et à la fréquence de 50 Hz). Enfin, nous déterminons la masse à la limite de détection (en grammes) en effectuant le rapport entre la limite de détection (en coups par seconde) et la sensibilité de la mesure (en coups par seconde et par gramme).

REFERENCES

- [**AIEA00**] International Atomic Energy Agency, livret de données photonucléaires, <http://www-nds.iaea.org/reports-new/tecdocs/iaea-tecdoc-1178.pdf>, 2000
- [**Antoni13**] R. Antoni, C. Passard, J. Lorida, B. Perot, M. Batifol, S. Le Tarnec, F. Guillaumin, G. Grassi, P. Strock, “Matrix effect correction with internal flux monitor in radiation waste characterization with the differential die-away technique”, *Proc. ANIMMA* (2013)
- [**Audi03**] G. Audi, O. Bersillon, J. Blachot, A.H. Wapstra, “The NUBASE evaluation of nuclear and decay properties”, *Nucl. Phys. A* **729** (2003) 3
- [**Benites-Rengifo13**] J.L. Benites-Rengifo, H.R. Vega-Carrillo, J. Velazquez-Fernandez, “Photoneutron spectrum measured with a Bonner sphere spectrometer in planetary method name”, *Appl. Radiat. Isotopes* (2013), <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.01.001>
- [**Berger70**] M.J. Berger, S.M. Seltzer, “Bremsstrahlung and photoneutrons from thick tungsten and tantalum targets”, *Phys. Rev. C* **2** (1970) 621
- [**Bergère68**] R. Bergère, H. Beil, A. Veysièrè, “Photoneutron cross sections of La, Tb, Ho and Ta”, *Nucl. Phys. A* **121** (1968) 463
- [**Bessièrès13**] I. Bessièrès, « Développement et validation expérimentale d’un outil de détermination de la dose hors-champ en radiothérapie », Thèse de Doctorat CEA (2013)
- [**Bourgois97**] L. Bourgois, D. Delacroix, A. Ostrowsky, “Use of bubble detectors to measure neutron contamination of a medical accelerator photon beam”, *Rad.Prot. Dos.* **74** (1997) 239
- [**Carinou05**] E. Carinou, I.E. Stamatelatos, V. Kamenopoulou, P. Georgolopoulou, P. Sandilos, “An MCNP-based model for the evaluation of the photoneutron dose in high energy medical electron accelerators”, *Physica Medica*, **XXI** (2005) 95
- [**Carrel07**] F. Carrel, « Etude et développement d’une technique de dosage d’actinides dans les colis de déchets radioactifs par interrogation photonique ou neutronique active et spectrométrie des gammas retardés », Thèse de Doctorat CEA (2007)
- [**Carrel10**] F. Carrel, M. Agelou, M. Gmar, F. Lainé, J. Lorida, J.-L. Ma, C. Passard, B. Poumarède, “Identification and differentiation of actinides inside nuclear waste packages by measurement of delayed gammas”, *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **57** (2010) 2862
- [**Carrel10b**] F. Carrel, M. Agelou, M. Gmar, F. Lainé, B. Poumarède, B. Rattoni, “Measurement of plutonium in large concrete radioactive waste packages by photon activation analysis”, *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **57** (2010) 3687
- [**Carrel11**] F. Carrel, M. Agelou, M. Gmar, F. Lainé, J. Lorida, J.-L. Ma, C. Passard, B. Poumarède, “New experimental results on the cumulative yields from thermal fission of ^{235}U and ^{239}Pu and from photofission of ^{235}U and ^{238}U induced by Bremsstrahlung”, *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **58** (2011) 2064
- [**Carrel11b**] F. Carrel, M. Agelou, M. Gmar, F. Lainé, “Detection of high-energy delayed gammas for nuclear waste packages characterization”, *Nucl. Instr. and Meth. A*, **652** (2011) 137
- [**Cataldi88**] M.I.C. Cataldi, E. Wolyne, M.N. Martins, P. Gouffon, Y. Miyao, « Electrodisintegration of ^{208}Pb , ^{209}Bi and ^{181}Ta », *J. Phys. G: Nucl. Phys.* **14** (1988) 779
- [**Chabert97**] J. Chabert, « Contrôle-commande des usines de retraitement. Instrumentation », Techniques de l’Ingénieur, BN 3 445 (1997)
- [**Chadwick32a**] J. Chadwick, “Possible existence of a neutron”, *Nature* **129** (1932) 312

- [**Chadwick32b**] J. Chadwick, “The existence of a neutron”, *Proceedings of the Royal Society, Series A* **136** (1932) 692
- [**Chadwick34c**] J. Chadwick, M. Goldhaber, “A ‘nuclear photo-effect’ : disintegration of the dipion by γ -rays”, *Nature* **134** (1934) 237
- [**Chakhlov99**] V.L. Chakhlov, Z.W. Bell, V.M. Golovkov, M.M. Shtein, “Photoneutron source based on a compact 10 MeV betatron”, *Nucl. Instr. and Meth. A* **422** (1999) 5
- [**CNDC**] Chinese Nuclear Data Center, bibliothèque de données nucléaires
- [**Courant51**] E. Courant, “Direct photodisintegration processes in nuclei”, *Phys. Rev.* **82** (1951) 703
- [**Dupont08**] E. Dupont, D. Doré, D. Ridikas, « Compilation et analyse des données nucléaires pour la photofission de ^{235}U , ^{238}U et ^{239}Pu », Rapport interne CEA (2008)
- [**ENDF/B-VI.8**] Evaluated Nuclear Data File/B-VI.8, bibliothèque de données nucléaires, <http://www.nndc.bnl.gov/exfor/endl00.jsp>
- [**ENDF/B-VII.1**] Evaluated Nuclear Data File/B-VII.1, bibliothèque de données nucléaires, <http://www.nndc.bnl.gov/exfor/endl00.jsp>
- [**Eshwarappa13**] K.M. Eshwarappa, S. Ganesh, K. Siddappa, Yogesh Kashyap, P.S. Sarkar, Amar Sinha, “Photoneutron spectrum estimation and its experimental validation using neutron REM (Roentgen Equivalent in Man) detector”, *Annals of Nuclear Energy* **57** (2013) 130
- [**Facure05**] A. Facure, R.C. Falcão, A.X. Silva, V.R. Crispim, J.C. Vitorelli, “Nuclear reactions at high energies”, *Appl. Radiat. Isotopes* **62** (2005) 69
- [**Favalli09**] A. Favalli, H.-C. Mehner, J.-M. Crochemore, B. Pedersen, “Pulsed neutron facility for research in illicit trafficking and nuclear safeguards”, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **56** (2009) 1292
- [**Fermi24**] E. Fermi, “Über die theorie des stoßes zwischen atomen und elektrisch geladenen teilchen”, *Z. Physik* **5** (1924) 315
- [**Fermi34**] E. Fermi, E. Amaldi, O. D’Agostino, F. Rasetti, E. Segrè, “Radioattività provocata da bombardamento di neutrino III”, *La Ricerca Scientifica* **5** (1934) 452
- [**Findlay90**] D. J. S. Findlay, “Applications of photonuclear reactions”, *Nucl. Instr. and Meth. B* **50** (1990) 314
- [**Franks82**] L.A. Franks, J.L. Pigg, J.T. Caldwell, M.R. Cates, W.E. Kunz, B.W. Noel, D.A. Close, “High-sensitivity transuranic waste assay by simultaneous photon and thermal-neutron interrogation using an electron linear accelerator”, *Nucl. Instr. and Meth.* **193** (1982) 571
- [**Frisch39**] O.R. Frisch, “Physical evidence for the division of heavy nuclei under neutron bombardment”, *Nature* **143** (1939) 276
- [**Gen_Elec**] Document technique *General Electric*
- [**Giacri05**] M.-L. Giacri-Mauborgne, thèse de doctorat CEA (2005)
- [**Gilmore95**] G. Gilmore, J. Hemingway, “Practical Gamma-Ray Spectrometry”, John Wiley & Sons (1995)
- [**Gmar00**] M. Gmar, « Dosage et différenciation des actinides dans les colis de déchets radioactifs par photofission et spectrométrie gamma retardés des produits de fission », Thèse de Doctorat CEA (2000)
- [**Gmar05**] M. Gmar, F. Jeanneau, F. Lainé, H. Makil, B. Poumarède, F. Tola, “Assessment of actinide mass embedded in large concrete waste packages by photon interrogation and photofission”, *Appl. Radiat. Isotopes* **63** (2005) 613
- [**Goldhaber48**] M. Goldhaber, E. Teller, “On nuclear dipole vibrations”, *Phys. Rev.* **74** (1948) 1046

- [**Goryachev69**] B.I. Goryachev, B.S. Ishkanov, I.M. Kapitonov, I.M. Piskarev, V.G. Shevchenko, O.P. Shevshenko, “The structure of photoneutron cross sections of V-51, Cr-52, and Co-59 in the field of giant dipole resonance”, *Izv. Akad. Nauk. SSSR, Ser. Fiz.* **33** (1969) 1736
- [**Goryachev78**] A.M. Goryachev, G.N. Zalesnyy, “Giant dipole resonance W-182, 184, 186 isotopes and the shape of transitional nuclei with A=170-198”, *Izv. Akad. Nauk. SSSR, Ser. Fiz.* **6** (1978) 8
- [**Hahn39**] O. Hahn, F. Strassman, “Über den Nachweis und das Verhalten der bei der Bestrahlung des Urans mittels Neutronen entstehenden Erdalkalimetalle”, *Naturwissenschaften* **27** (1939) 11
- [**Huang05**] W.L. Huang, Q.F. Li, Y.Z. Lin, “Calculations of photoneutrons produced in the targets of electron linear accelerators for radiography and radiotherapy applications”, *Nucl. Instr. and Meth. B* **229** (2005) 339
- [**Ishkanov69**] B.S. Ishkanov, I.M. Kapitonov, E.V. Lazutin, I.M. Piskarev, O.P. Shevchenko, “Photoneutron cross sections of La, Tb, Ho and Ta”, *Izv. Akad. Nauk SSSR, Ser. Fiz.* **33** (1969) 2074
- [**Jallu99a**] F. Jallu, « Double interrogation simultanée neutrons et photons utilisant un accélérateur d'électrons pour la caractérisation séparée des actinides dans les déchets radioactifs enrobés », Thèse de Doctorat CEA (1999)
- [**Jallu99b**] F. Jallu, A. Lyoussi, E. Payan, H. Recroix, A. Mariani, G. Nurdin, A. Buisson, J. Allano, “Photoneutron production in tungsten, praseodymium, copper and beryllium by using high energy electron linear accelerator”, *Nucl. Instr. and Meth. B* **155** (1999) 373
- [**Jallu00**] F. Jallu, A. Lyoussi, C. Passard, E. Payan, H. Recroix, G. Nurdin, A. Buisson, J. Allano, “The simultaneous neutron and photon interrogation method for fissile and non-fissile element separation in radioactive waste drums”, *Nucl. Instr. and Meth. B* **170** (2000) 489
- [**Jallu06**] F. Jallu, A. Mariani, C. Passard, A.C. Raoux, H. Toubon, “Alpha-particle low-level waste control: improvement of the PROMETHEE 6 assay system performances”, *Nucl. Technol.* **153** (2006) 107
- [**Jallu11**] F. Jallu, C. Passard, E. Brackx, “Application of active and passive neutron non destructive assay methods to concrete radioactive waste drums”, *Nucl. Instr. and Meth. B* **269** (2011) 1956
- [**Jones05**] J.L. Jones, W.Y. Yoon, D.R. Norman, K.J. Haskell, J.M. Zabriskie, S.M. Watson, J.W. Sterbentz, “Photonuclear-based, nuclear material detection system for cargo containers”, *Nucl. Instr. and Meth. B* **241** (2005) 770
- [**Kosako11**] K. Kosako, K. Oishi, T. Nakamura, M. Takada, K. Sato, T. Kamiyama, Y. Kiyonagi, « Angular distribution of photoneutrons from copper and tungsten targets bombarded by 18, 28 and 38 MeV electrons », *J. Nucl. Sci. Technol.* **48** (2011) 227
- [**Lakosi11**] L. Lakosi, C. Tam Nguyen, E. Serf, “Neutron interrogation of shielded/unshielded uranium by a 4 MeV linac”, *Appl. Radiat. Isotopes* **69** (2011) 1251
- [**Leprêtre74**] A. Leprêtre, H. Beil, R. Bergère, P. Carlos, A. Deminiac, A. Veyssière, “A study of the giant dipole resonance in the A=103-133 mass region”, *Nucl. Phys. A* **219** (1974) 39
- [**Levinger51**] J. S. Levinger, “The high energy nuclear photo-effect”, *Phys. Rev.* **84** (1951) 43
- [**Liu95**] J.C. Liu, W.R. Nelson, K.R. Kase, X.S. Mao, “Calculations of the giant-dipole-resonance photoneutrons using a coupled EGS4-MORSE code”, (Stanford Linear Accelerator Center, Stanford, CA) SLAC-PUB-95-6764 (1995)
- [**Loi n°91-1381**] Loi n°91-1381 du 30 décembre 1991 relative aux recherches sur la gestion des déchets radioactifs, Journal Officiel
- [**Loi n°2006-739**] Loi n°2006-739 du 28 juin 2006 de programme relative à la gestion durable des matières nucléaires et déchets radioactifs, Journal Officiel

- [**Lyoussi94**] A. Lyoussi, « Dosage, par photofissions induites, de faibles quantités d'actinides dans les déchets radioactifs enrobés », Thèse de Doctorat CEA (1994)
- [**Lyoussi99**] A. Lyoussi, J. Romeyer-Dherbey, F. Jallu, E. Payan, A. Buisson, G. Nurdin, J. Allano, "Transuranic waste detection by photon interrogation and on-line delayed neutron counting", *Nucl. Instr. and Meth B* **160** (1999) 280
- [**Lyoussi05a**] A. Lyoussi, « Mesure nucléaire non destructive dans le cycle du combustible. Partie 1 », Techniques de l'Ingénieur, BN 3 405 (2005)
- [**Lyoussi05b**] A. Lyoussi, « Mesure nucléaire non destructive dans le cycle du combustible. Partie 2 », Techniques de l'Ingénieur, BN 3 406 (2005)
- [**Lyoussi10**] A. Lyoussi, « Détection de rayonnements et instrumentation nucléaire », collection Génie Atomique (2010)
- [**Mariani03**] A. Mariani, C. Passard, F. Jallu, H. Toubon, "The help of simulation codes in designing waste assay systems using neutron measurement methods: Application to the alpha low level waste away system PROMETHEE 6", *Nucl. Instr. and Meth B* **211** (2003) 389
- [**McCall81**] R.C. McCall, "Neutron radiation from medical electrons accelerators", Rapport du *SLAC National Accelerator Laboratory*, SLAC-PUB-2739 (1981)
- [**McMillan49**] E.M. McMillan, J.M. Peterson, R.S. White, "Production of mesons by X-rays", *Science* **110** (1949) 579
- [**Meitner39**] L. Meitner, O. R. Frisch, "Disintegration of uranium by neutrons: a new type of nuclear reaction", *Nature* **143** (1939) 239
- [**Morel04**] J. Morel, M. Bickel, C. Hill, A. Verbruggen, "Results of the international Pu-2000 exercise for plutonium isotopic composition measurements", *Appl. Radiat. Isotopes* **60** (2004) 607
- [**Moulin04**] V. Moulin, V. Rebuffel, M. Antonakios, R. Sauze, J.P. Goriou, "X-ray imaging modalities for nuclear waste drums inspection", *Proc. 16th World Conf. NDT* (2004)
- [**Mutchler66**] G.S. Mutchler, "The angular distributions and energy spectra of photoneutrons from heavy elements", Thèse de Doctorat Massachusetts Institute of Technology (1966)
- [**Naseri10**] A. Naseri, A. Mesbahi, "A review on photoneutrons characteristics in radiation therapy with high-energy photon beams", *Reports of practical oncology and radiotherapy* **15** (2010) 138
- [**Nikotin66**] O.P. Nikotin, K.A. Petrzhak, "Delayed neutrons in the photofission of heavy nuclei", *Atomnaya Energiya* **20** (1966) 268
- [**Nieschmidt77**] E. Nieschmidt, S. Vegors, "Selection of a criticality monitoring technique for transuranic waste incinerator", *Idaho National Engineering Laboratory*, rapport TREE-1277 (1977).
- [**Noddack34**] I. Noddack, "Über das Element 93", *Zeitschrift für Angewandte Chemie* **47**(1934) 653
- [**Ongaro00**] C. Ongaro, A. Zanini, U. Nastasi, J. Ródenas, G. Ottaviano, C. Mandredotti, K.W. Burn, "Analysis of photoneutron spectra produced in medical accelerators", *Phys. Med. Biol.* **45** (2000) L55-L61
- [**Passard93**] C. Passard, « Application de l'interrogation neutronique active à l'analyse en ligne dans les usines de retraitement », Thèse de Doctorat CEA (1993)
- [**Passard02**] C. Passard, A. Mariani, F. Jallu, J. Romeyer-Dherbey, H. Recroix, M. Rodriguez, J. Loridaon, C. Denis, H. Toubon, "Alpha-particle low-level waste control: improvement of the PROMETHEE 6 assay system performances", *Nucl. Technol.* **140** (2002) 1
- [**Pérot96**] B. Pérot, « Optimisation des méthodes de mesure neutronique active pour les déchets radioactifs et contribution à la modélisation d'un dispositif industriel », Thèse de Doctorat CEA (1996)

- [Pérot03] B. Pérot, J.L. Artaud, C. Passard, A.C. Raoux, “Experimental qualification with a scale one mock-up of the “measurement and sorting unit” for bituminized waste drums”, *Proc. ICEM’03* (2003)
- [Petwal07] V.C. Petwal, V.K. Senecha, K.V. Subbaiah, H.C. Soni, S. Kotaiah, “Optimization studies of photo-neutron production in high-Z metallic targets using high energy electron beam for ADS and transmutation”, *J. Phys.* **68** (2007) 235
- [Raoux00] A.-C. Raoux, « Interprétation de mesures nucléaires non destructives combinées pour la caractérisation de colis de déchets radioactifs », Thèse de Doctorat CEA (2000)
- [Raoux03] A.C. Raoux, A. Lyoussi, C. Passard, C. Denis, J. Loridon, J. Misraki, P. Chany, “Transuranic waste assay by neutron interrogation and online prompt and delayed neutron measurement” *Nucl. Instr. and Meth B* **207** (2003) 186
- [Raoux08] A.C. Raoux, J. Loridon, A. Mariani, C. Passard, “Improved analysis for matrix effect correction in LLW neutronic assay”, *Nucl. Instr. and Meth B* **266** (2008) 4837
- [Sáfár94] J. Sáfár, L. Lakosi, “Photoneutron production by Bremsstrahlung in the target and the converter”, *Appl. Radiat. Isotopes* **45** (1994) 1057
- [Seltzer73] S.M. Seltzer, M.J. Berger, “Photoneutron production in thick targets” *Phys. Rev. C* **7** (1973) 858
- [Serber47] R. Serber, “Nuclear reactions at high energies”, *Phys. Rev.* **72** (1947) 1114
- [Shepp82] L.A. Shepp, Y. Vardi, “Maximum likelihood reconstruction for emission tomography”, *IEEE Trans. Med. Imaging* **1** (1982) 113
- [Simon11] A.-C. Simon, F. Carrel, I. Espagnon, M. Lemercier, A. Pluquet, “Determination of actinide isotopic composition: performances of the IGA code on plutonium spectra according to the experimental setup”, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **58** (2011) 378
- [Stephens58] L.D. Stephens, A.R. Smith, “Fast-neutron surveys using indium-foil activation”, UCRL-8418 (1958)
- [Sodern] SODERN, <http://www.sodern.com>
- [Swanson79] W.P. Swanson, “Improved calculation of photoneutron yields released by incident electrons”, *Health Phys.* **37** (1979) 347
- [Tagliabue60] F. Tagliabue, J. Goldemberg, “Angular distribution of fast photoneutrons”, *Nucl. Phys.* **23** (1960) 144
- [TENDL-2012] TALYS-based Evaluated Nuclear Data Library, bibliothèque de données nucléaires, <http://www.talys.eu/tendl2012.html>
- [Tosi91] G. Tosi, A. Torresin, “Neutron measurements around medical electron accelerators by active and passive detection techniques”, *Med. Phys.* **18** (1991) 54
- [Toubon01] 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. WM’01 Conference* (2001)
- [Vega-Carrillo12] H.R. Vega-Carrillo, S.A. Martínez-Ovalle, A.M. Lallena, G.A. Mercado, J.L. Benites-Rengifo, “Neutron and photon spectra in LINACs”, *Appl. Radiat. Isotopes* **71** (2012) 75
- [Veysseyre74] A. Veysseyre, H. Beil, R. Bergère, P. Carlos, A. Leprêtre, A. De Miniac, “A study of the photoneutron contribution to the giant dipole resonance of s-d shell nuclei”, *Nucl. Phys. A* **227** (1974) 513
- [Vylet01] V. Vylet, J.C. Liu, “Radiation protection at high energy electron accelerators”, *Rad. Prot. Dos.* **96** (2001) 333

[Waldo81] R.W. Waldo, R.A. Karam, R.A. Meyer, “Delayed neutrons yields: Time dependent measurements and a predictive model”, *Phys. Rev. C* **23** (1981) 1113

[Weisskopf37] V. Weisskopf, “Statistics and nuclear reactions”, *Phys. Rev.* **52** (1937) 295

[Wilkinson56] D.H. Wilkinson, “Nuclear photodisintegration” *Physica* **22** (1956) 1039

[Xu10] H.-B. Xu, X.-K. Peng, C.-B. Chen, “Monte Carlo simulation for Bremsstrahlung and photoneutron yields in high-energy x-ray radiography”, *Chin. Phys. B* **19** (2010) 062901

LISTE DES FIGURES

Figure 1.1 : Différents types de colis de déchets radioactifs. De gauche à droite : bloc TE, coque CBFC-2, fût de 870 L, fût de 220 L, colis CSDC.	11
Figure 1.2 : Mesure de spectrométrie gamma passive sur un colis de type CBFC-2 avec un détecteur germanium (à gauche), et exemple de spectre [Carrel10b] (à droite).	14
Figure 1.3 : Mesure de comptage neutronique passif sur un colis de type CBFC-2 avec des blocs de détection contenant des détecteurs à ^3He (à gauche), et exemple de comptages obtenus [Carrel10b] (à droite).	15
Figure 1.4 : SYMETRIC : cellule dédiée à la mesure par interrogation neutronique active.	17
Figure 1.5 : Deux exemples de résultats obtenus grâce à l’interrogation photonique active de colis : comptage neutronique actif [Carrel11b] (à gauche) et tomographie de photofission [Carrel10b] (à droite).	18
Figure 1.6 : Représentation d’un dispositif à deux cibles [Eshwarappa13].	18
Figure 1.7 : Imageur numérique de type EPID (à gauche) et exemple de dispositif expérimental d’imagerie haute énergie (à droite).	19
Figure 1.8 : Images haute énergie d’un fût de 870 L contenant des colis de déchets compactés (à gauche) et d’un colis CBFC2 (à droite). Images retraitées à l’aide du logiciel <i>Photoshop CS5</i>	20
Figure 1.9 : Sections efficaces de fission pour ^{235}U , le ^{239}Pu , et ^{238}U [ENDF/B-VII.1, Lyoussi10].	22
Figure 1.10 : Sections efficaces de photofission pour ^{235}U , le ^{239}Pu , et ^{238}U [ENDF/B-VII.1].	23
Figure 1.11 : Spectres en énergie des neutrons prompts et retardés de fission thermique sur ^{235}U , obtenus avec le code de simulation MCNPX.	24
Figure 1.12 : Section efficace photonucléaire totale par nucléon en fonction de l’énergie du photon ou de sa longueur d’onde réduite [Findlay90].	27
Figure 1.13 : Exemples de spectre en énergie de photoneutrons émis par une cible de plomb irradiée par des électrons de 45 MeV [Xu10].	29
Figure 2.1 : Spectres en énergie des photoneutrons émis par une cible de tungstène irradiée par des électrons de 12 MeV, 14 MeV, 16 MeV, ou 18 MeV. Résultats obtenus avec MCNPX.	31
Figure 2.2 : Spectres en énergie des photoneutrons émis par une cible de tantale irradiée par des électrons de 15 MeV. Comparaison des résultats obtenus avec MCNPX et TRIPOLI-4 et agrandissement de la région basse énergie du spectre MCNPX.	32
Figure 2.3 : Spectres en énergie des photoneutrons émis par une cible de tungstène irradiée par des électrons de 15 MeV. Comparaison des résultats obtenus avec MCNPX et TRIPOLI-4 et agrandissement de la région basse énergie du spectre MCNPX.	33
Figure 2.4 : Distribution angulaire des photoneutrons émis par une cible de tungstène ou de tantale irradiée par des électrons de 15 MeV (cible cylindrique, épaisseur d’1 cm et diamètre de 5 cm). Résultats obtenus avec MCNPX.	34
Figure 2.5 : Taux de production (γ , xn) en fonction de la profondeur dans une cible de tungstène irradiée par des électrons de 15 MeV. Résultats obtenus avec MCNPX.	35
Figure 2.6 : Sections efficaces photonucléaires du ^{180}W	38
Figure 2.7 : Sections efficaces photonucléaires du ^{183}W	38
Figure 2.8 : Sections efficaces photonucléaires du ^{182}W	39

Figure 2.9 : Sections efficaces photonucléaires du ^{184}W	39
Figure 2.10 : Sections efficaces photonucléaires du ^{186}W	40
Figure 2.11 : Sections efficaces photonucléaires du ^{181}Ta	40
Figure 2.12 : Évolution de l'intensité moyenne d'émission photoneutronique en fonction de l'épaisseur de la cible de tungstène ou de tantale irradiée par des électrons de 17 MeV.	45
Figure 2.13 : Distribution angulaire des photoneutrons émis par une cible de tantale présentant une épaisseur comprise entre 5 mm et 5 cm. Résultats obtenus avec MCNPX pour une énergie d'électrons de 17 MeV.	46
Figure 2.14 : Évolution du nombre de photons de plus de 6 MeV par électron incident en fonction de l'épaisseur de la cible de tungstène ou de tantale irradiée par des électrons de 17 MeV.....	47
Figure 2.15 : Schéma d'un détecteur à activation neutronique.	49
Figure 2.16 : Taux de réaction (n, γ) dans la plaque du détecteur à activation en fonction de l'épaisseur de polyéthylène sur les faces avant et arrière.	50
Figure 2.17 : Schéma MCNPX du hall d'irradiation de l'installation SAPHIR.	51
Figure 2.18 : Le détecteur à activation neutronique fabriqué suite à l'étude de conception par simulation, contenant une plaque d'argent et en position ouverte (face avant retirée).....	51
Figure 2.19 : Accélérateur d'électrons de l'installation SAPHIR [Carrel10].....	52
Figure 2.20 : Principe de la mesure de distribution angulaire.	53
Figure 2.21 : Configuration expérimentale mise en place pour l'acquisition des spectres gamma de désactivation, et exemple de spectre obtenu pour le cas d'une plaque de vanadium (agrandissement de la région d'intérêt à 1434 keV).....	53
Figure 2.22 : Distribution angulaire du flux de photoneutrons émis par une cible de tantale irradiée par des électrons de 17 MeV, mesurée à l'aide du détecteur à activation contenant une plaque de vanadium, d'argent ou d'aluminium.	54
Figure 2.23 : Distribution angulaire du flux de photoneutrons émis par une cible de tantale irradiée par des électrons de 14 MeV ou 17 MeV, mesurée à l'aide du détecteur à activation contenant une plaque de vanadium.	55
Figure 2.24 : Distribution angulaire du flux de photoneutrons émis par une cible de tantale ou une cible de tungstène irradiée par des électrons de 17 MeV, mesurée à l'aide du détecteur à activation contenant une plaque de vanadium.	55
Figure 2.25 : Sections efficaces électronucléaires de réaction (e, n) pour le ^{181}Ta [Cataldi88].....	56
Figure 2.26 : Schéma MCNPX du porte-cible de l'accélérateur d'électrons de l'installation SAPHIR.....	57
Figure 2.27 : Différentes sections efficaces (γ, xn) sur le cadmium naturel, l'argent naturel, le ^{51}V et l' ^{27}Al [Leprêtre74, Goryachev69, Veyssière74].....	58
Figure 2.28 : Section efficace (γ, xn) sur l' ^{109}Ag mesurées par Ishkanov <i>et al.</i> en 1969 [Ishkanov69].	58
Figure 2.29 : Spectres en énergie des photoneutrons émis par une cible de tungstène irradiée par des électrons présentant une énergie moyenne de 14 MeV ou 17 MeV.....	61
Figure 2.30 : Comparaison entre efficacités de détection gamma mesurées et simulées pour le détecteur GEM40P-PLUS fabriqué par ORTEC.....	63
Figure 2.31 : Sections efficaces de production (γ, xn) du ^{181}Ta	65
Figure 2.32 : Sections efficaces de production (γ, xn) du ^{184}W	66

Figure 2.33 : Détecteur à activation sur le banc de mesure du profil photoneutron face à l'accélérateur médical (à gauche), et acquisition de spectre gamma de désactivation (à droite).	67
Figure 2.34 : Profils d'émission photoneutronique de l'accélérateur Saturne 43F mesurés par activation d'argent ou de vanadium à 20 MV photon.	68
Figure 2.35 : Profils d'émission photoneutroniques mesurés par activation de vanadium à 12 MV et 20 MV photon.	68
Figure 2.36 : Visualisation MCNPX de l'accélérateur médical Saturne 43F. Modèles à 12 MV et 20 MV photon respectivement à gauche et à droite.	69
Figure 2.37 : Profils d'émission photoneutronique mesurés et simulés à 12 MV photon, détecteur à activation contenant une plaque de vanadium.	70
Figure 2.38 : Profils d'émission photoneutronique mesurés et simulés à 20 MV photon, détecteur à activation contenant une plaque de vanadium.	71
Figure 2.39 : Contribution des composants de l'accélérateur médical au signal mesuré par le détecteur à activation en chaque position, résultats obtenus à 20 MV photon.	71
Figure 2.40 : Schéma de l'accélérateur d'électrons Saturne 43F [Gen_Elec].	72
Figure 2.41 : Profils d'émission photoneutronique mesurés et simulés à 12 MV photon par activation de vanadium, sans contribution de la cible aux positions 75 cm et 100 cm.	73
Figure 2.42 : Profils d'émission photoneutronique mesurés et simulés à 20 MV photon par activation de vanadium, sans contribution de la cible aux positions 75 cm et 100 cm.	73
Figure 2.43 : Spectre en énergie des photoneutrons émis par l'accélérateur médical à 12 MV photon.	74
Figure 2.44 : Spectre en énergie des photoneutrons émis par l'accélérateur médical à 20 MV photon.	74
Figure 3.1 : Schéma d'une cellule neutronique basée sur un accélérateur d'électrons.	83
Figure 3.2 : Simulation MCNPX du taux de fission total dans un échantillon d'uranium en fonction de l'épaisseur des blocs de polyéthylène constituant la cellule neutronique.	83
Figure 3.3 : À gauche : maquette de cellule neutronique basée sur un accélérateur d'électrons. À droite : tête de l'accélérateur d'électrons à l'entrée de la cellule.	84
Figure 3.4 : Signaux neutroniques obtenus après 10 minutes d'irradiation de l'échantillon de référence de plutonium, avec et sans cadmium autour de l'échantillon durant l'irradiation.	85
Figure 3.5 : Comparaison de signaux neutroniques obtenus après 10 minutes d'irradiation pour le cas de plusieurs échantillons d'uranium présentant différentes masses d' ²³⁵ U.	85
Figure 3.6 : Configuration expérimentale mise en place pour l'acquisition des spectres de gamma retardés avec un détecteur germanium.	86
Figure 3.7 : Spectres de gamma retardés obtenus pour l'échantillon de référence d'uranium, avec et sans enveloppe de cadmium autour de l'échantillon durant l'irradiation.	86
Figure 3.8 : Signal des neutrons prompts <i>versus</i> durée d'irradiation.	87
Figure 3.9 : Signal des neutrons retardés <i>versus</i> durée d'irradiation.	87
Figure 3.10 : Signal des neutrons prompts <i>versus</i> masse d' ²³⁵ U ou de ²³⁹ Pu.	88
Figure 3.11 : Signal des neutrons retardés <i>versus</i> masse d' ²³⁵ U ou de ²³⁹ Pu.	88
Figure 3.12 : Rapport entre les signaux des neutrons prompts et des neutrons retardés <i>versus</i> masse d' ²³⁵ U ou de ²³⁹ Pu.	90

Figure 3.13 : Signal des gamma retardés <i>versus</i> masse d' ²³⁵ U pour les quatre produits de fission étudiés.....	93
Figure 3.14 : Configuration expérimentale mise en place lors de la mesure d'interrogation photonique active..	95
Figure 3.15 : Rapports entre le signal des neutrons prompts de fission thermique et le signal des neutrons retardés de photofission en fonction de l'enrichissement de l'uranium.....	95
Figure 3.16 : Rapports entre le signal des neutrons retardés de fission thermique et le signal des neutrons retardés de photofission en fonction de l'enrichissement de l'uranium.....	96
Figure 3.17 : Rapports entre le signal des gamma retardés de fission thermique et le signal des gamma retardés de photofission en fonction de l'enrichissement de l'uranium.	96
Figure 4.1 : Évolution du taux de fission pour un échantillon d' ²³⁵ U dans une cellule en polyéthylène ou en graphite pour différentes épaisseurs des parois de la cellule.	100
Figure 4.2 : Vue en coupe de la cellule neutronique dimensionnée pour des colis de 220 L.	101
Figure 4.3 : Produit du taux de fission et des efficacités de détection, configuration sans fût.	102
Figure 4.4 : Produit du taux de fission et des efficacités de détection, fût contenant une matrice en fer de 0,2 g/cm ³	102
Figure 4.5 : Produit du taux de fission et des efficacités de détection, fût contenant une matrice en fer de 0,5 g/cm ³	103
Figure 4.6 : Produit du taux de fission et des efficacités de détection, fût contenant une matrice en PVC de 0,2 g/cm ³	103
Figure 4.7 : Produit du taux de fission et des efficacités de détection, fût contenant une matrice en PVC de 0,5 g/cm ³	104
Figure 4.8 : Taux de fission induit par un accélérateur d'électrons (photoneutrons d'une énergie moyenne d'1 MeV) ou un générateur deutérium-tritium (neutrons de 14 MeV).	105
Figure 4.9 : Taux de fission en fonction de l'épaisseur de la cible de conversion.	106
Figure 4.10 : Évolution du taux de fission dans un échantillon d' ²³⁵ U en fonction de l'énergie des électrons. .	107
Figure 4.11 : Position de la cible dans la cellule.	108
Figure 4.12 : Taux de photofission parasite en fonction de l'emplacement de la cible.....	108
Figure 4.13 : Distribution angulaire des photons émis par la cible.	109
Figure 4.14 : Part de la fission rapide dans l'échantillon en fonction de l'épaisseur d'enrobage de polyéthylène autour de la cible.	110
Figure 4.15 : Taux de fission dans l'échantillon en fonction de l'épaisseur d'enrobage de polyéthylène autour de la cible.	110
Figure 4.16 : Bloc de détection en configuration d'interrogation photonique active en haut et d'interrogation neutronique active en bas.	112
Figure 4.17 : Représentations MCNPX de trois configurations pour le positionnement de détecteurs ³ He dans un bloc de détection. Configurations numérotées 1, 2 et 3 de la gauche vers la droite.	112
Figure 4.18 : Efficacité de détection absolue en fonction de l'épaisseur de polyéthylène sur la face avant du bloc.	114
Figure 4.19 : Temps de demi-vie des neutrons prompts de fission thermique en fonction de l'épaisseur de polyéthylène sur la face avant du bloc.....	115

Figure 4.20 : Optimisation de l'efficacité de détection absolue par ajustement de l'épaisseur de polyéthylène sur la face arrière du bloc.	116
Figure 4.21 : Variation du temps de demi-vie des neutrons prompts de fission thermique en fonction de l'épaisseur de polyéthylène sur la face arrière du bloc.	116
Figure 4.22 : Distribution angulaire du flux de photons émis par une cible de tungstène irradiée par des électrons de 10 MeV, 15 MeV et 20 MeV. Comparaison des calculs MCNPX (à gauche) avec ceux publiés par Berger <i>et al.</i> [Berger70].	118
Figure 4.23 : À gauche : distributions angle-énergie simulées avec MCNPX pour les photons et les photoneutrons émis par une cible de tungstène de 5 mm d'épaisseur irradiée par des électrons de 15 MeV. À droite : résultats publiés par H.-B. Xu <i>et al.</i> [Xu10].	119
Figure 4.24 : Production de photons de plus de 6 MeV en fonction de l'épaisseur d'une cible de tungstène irradiée par des électrons de 10 MeV, 15 MeV, ou 20 MeV.	120
Figure 4.25 : À gauche : représentation de la cellule de mesure d'interrogation neutronique active de l'installation SAPHIR. À droite : la cellule sur sa fourche (face arrière retirée).	121
Figure 4.26 : Comparaison entre les comptages neutroniques obtenus avec la nouvelle cellule et la précédente pour un échantillon d'uranium enrichi à 9,6%.	122
Figure 4.27 : À gauche : fût de 220 L placé dans la cellule de mesure d'interrogation neutronique active (face arrière retirée). À droite : fût contenant une matrice vinyle de 0,02 g/cm ³	123
Figure 4.28 : À gauche : fût contenant une matrice fer de 0,22 g/cm ³ . À droite : fût contenant une matrice polyéthylène de 0,45 g/cm ³	123
Figure 4.29 : Image haute énergie d'un fût de 220 L contenant une matrice fer de 0,22 g/cm ³ , image traitée à l'aide du logiciel Photoshop CS5.	124
Figure 4.30 : Comptages neutroniques obtenus pour un échantillon d'uranium enrichi à 9,6% en position centrée pour les différentes configurations de mesure.	126
Figure 4.31 : Signaux prompts <i>versus</i> masses d' ²³⁵ U obtenus pour les différentes configurations de mesure... ..	127
Figure 4.32 : Rapports entre signaux prompt et retardé obtenus en fonction de la masse d' ²³⁵ U dans différentes configurations de mesure.	128
Figure 4.33 : Cibles de tungstène ou de tantale de différentes épaisseurs (1 cm, 2 cm et 3 cm).	128
Figure 4.34 : Signaux prompts obtenus en fonction de la masse d' ²³⁵ U en configuration matrice fer pour deux énergies moyennes du spectre d'électrons (14 MeV et 17 MeV).	129
Figure 4.35 : Signaux prompts obtenus en fonction de la masse d' ²³⁵ U en configuration matrice fer avec une cible de tantale ou de tungstène.	130
Figure 4.36 : Signaux prompts obtenus en fonction de la masse d' ²³⁵ U en configuration matrice fer pour différentes épaisseurs de la cible de tantale comprises entre 5 mm et 4 cm.	131

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1.1 : Classification des déchets radioactifs en fonction des critères d'activité massique et de durée de vie [Carrel07].....	12
Tableau 1.2 : Classification des neutrons retardés de fission thermique pour l' ²³⁵ U et le ²³⁹ Pu, et de fission rapide pour l' ²³⁸ U (valeurs de $\beta_i v_i$ exprimées pour 10 ⁵ fissions) [Waldo81].	25
Tableau 1.3 : Classification des neutrons retardés de photofission pour l' ²³⁵ U, l' ²³⁸ U et le ²³⁹ Pu (valeurs de $\beta_i v_i$ exprimées pour 10 ⁵ photofissions) [Nikotin66].	25
Tableau 2.1 : Intensités moyennes du flux de photoneutrons émis par une cible de tungstène, calculées avec MCNPX à partir de taux de production (γ, xn) avec les sections efficaces d'ENDF/B-VII et de CNDC. ...	36
Tableau 2.2 : Intensités moyennes du flux de photoneutrons émis par une cible de tungstène, calculées avec MCNPX à partir de taux de production (γ, xn) ou (γ, n) + 2(γ, n) avec les sections efficaces de CNDC. ...	37
Tableau 2.3 : Intensités moyennes du flux de photoneutrons émis par une cible de tungstène en fonction de l'énergie des électrons. Comparaison des résultats obtenus avec MCNPX et TRIPOLI-4.....	42
Tableau 2.4 : Intensités moyennes du flux de photoneutrons émis par une cible de tantale en fonction de l'énergie des électrons. Comparaison des résultats obtenus avec MCNPX et TRIPOLI-4.....	43
Tableau 2.5 : Principales caractéristiques de l'isotope radioactif d'intérêt produit suite à l'activation neutronique des plaques de vanadium, d'argent, et d'aluminium [Audi03, ENDF/B-VII.1].	49
Tableau 2.6 : Site de création des photoneutrons activant le détecteur en chaque position de la mesure de distribution angulaire. Résultats de simulation MCNPX obtenus pour le détecteur contenant la plaque de vanadium.	59
Tableau 2.7 : Simulations MCNPX des intensités moyennes du flux de photoneutrons émis par la cible de tantale ou de tungstène du LINAC de SAPHIR irradiée par des électrons présentant une énergie moyenne de 14 MeV ou 17 MeV.....	61
Tableau 2.8 : Ratios entre aires nettes calculées et mesurées (trois facteurs de correction inclus), détecteur à activation contenant la plaque de vanadium, d'argent ou d'aluminium et cible de tantale ou de tungstène irradiée par des électrons présentant une énergie moyenne de 14 MeV ou 17 MeV. Calculs réalisés avec les sections efficaces de réaction (n, γ) issues d'ENDL-92 ou d'ENDF/B-VI.....	64
Tableau 2.9 : Contribution des matériaux de l'accélérateur médical à la production de photoneutrons pour les modèles à 12 MV ou 20 MV photon.	69
Tableau 2.10 : Contribution des composants de l'accélérateur médical à la production de photoneutrons pour les modèles à 12 MV ou 20 MV photon.	70
Tableau 2.11 : Ratios entre aires nettes calculées et mesurées, détecteur à activation contenant la plaque de vanadium, d'argent ou d'aluminium, pour l'accélérateur médical à 12 MV ou 20 MV photon. Calculs réalisés avec les sections efficaces de réaction (n, γ) issues d'ENDL-92.....	76
Tableau 3.1 : Principales caractéristiques des échantillons d'uranium utilisés.	82
Tableau 3.2 : Principales caractéristiques des échantillons de plutonium utilisés.	82
Tableau 3.3 : Rapports entre mesure et calcul des rapports des signaux de neutrons prompts et de neutrons retardés, avec et sans correction de la part de fission rapide et de photofission dans les rapports expérimentaux.	91
Tableau 3.4 : Aires nettes extraites d'un spectre de gamma retardés obtenu pour un échantillon d'uranium de dix grammes enrichi à 93%.	92

Tableau 3.5 : Aires nettes extraites d'un spectre de gamma retardés obtenu pour l'échantillon de référence d'uranium.	92
Tableau 4.1 : Efficacités de détection absolue pour les trois configurations des blocs de détection de la figure 4.17.	113
Tableau 4.2 : Temps de demi-vie pour les trois configurations des blocs de détection.	113
Tableau 4.3 : Comparaison entre les performances d'un bloc de détection optimisé et celles d'un bloc constitué de cinq tubes disponible sur l'installation SAPHIR.	117

LISTE DES PUBLICATIONS ET COMMUNICATIONS ORALES

Articles de revue à comité de lecture :

A. Sari, F. Carrel, M. Gmar, F. Lainé, A. Lyoussi, S. Normand, « Detection of actinides with an electron accelerator by active photoneutron interrogation measurements », *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **59** (2012) 605

A. Sari, M. Agelou, I. Bessières, F. Carrel, M. Gmar, F. Lainé, A. Lyoussi, S. Normand, A. Ostrowsky, L. Sommier, « Characterization of the photoneutron emitted by an electron accelerator using an activation detector », *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **60** (2013) 693

A. Sari, F. Carrel, F. Lainé, A. Lyoussi, « Neutron interrogation of actinides with a 17 MeV electron accelerator and first results from photon and neutron interrogation non-simultaneous measurements combination », *Nucl. Instr. and Meth. B* **312** (2013) 30

A. Sari, F. Carrel, F. Lainé, A. Lyoussi, « Design of a neutron interrogation cell based on an electron accelerator and performance assessment on 220 liter nuclear waste mock-up drums », *IEEE Trans. Nucl. Sci.* (2014)

A. Sari, M. Ledieu, F. Lainé, F. Carrel, *Nucl. Instr. and Meth. A*

H. Naik, F. Carrel, G.N. Kim, F. Lainé, **A. Sari**, S. Normand, A. Goswani, « Mass yield distributions of fission products from photo-fission of ^{238}U induced by 11.5–17.3 MeV bremsstrahlung », *Eur. Phys. J. A* **49** (2013) 94

F. Carrel, B. Charbonnier, R. Coulon, F. Lainé, S. Normand, C. Salmon, **A. Sari**, « Characterization of old nuclear waste packages coupling photon activation analysis and complementary non-destructive techniques », *IEEE Trans. Nucl. Sci.*

Actes de congrès :

A. Sari, F. Carrel, C. Jouanne, O. Petit, A. Lyoussi, « Optimization of the photoneutron flux emitted by an electron accelerator for neutron interrogation applications using MCNPX and TRIPOLI-4 Monte Carlo codes », *Proceedings of the 4th International Particle Accelerator Conference*, pp. 3630-3632

A. Sari, F. Carrel, C. Jouanne, F. Lainé, A. Lyoussi, O. Petit, « Optimization of the photoneutron emitted by an electron accelerator for neutron interrogation applications using MCNPX and TRIPOLI-4 Monte Carlo codes and performance assessment on 220 liter nuclear waste mock-up drums », *Proceedings of the INMM 54th Annual Meeting*

Présentations en conférences internationales :

2011 IEEE NSS/MIC/RTSD, Valence (Espagne)

SORMA West 2012, Oakland (Californie)

IPAC 2013, Shanghai (Chine)

ANIMMA 2013, Marseille (France)

INMM 54th Annual Meeting, Palm Desert (Californie)