

DÉTERMINATION DE L'ENRICHISSEMENT de produits uranifères par mesures de spectrométrie gamma : exploitation statistique d'un plan d'expériences pour maîtriser les incertitudes des mesures

Pierre FUNK

Service d'appui technique et d'études

Anne-Laure WEBER, Nicolas PÉPIN, Olivier LOISEAU

Laboratoire mesures malveillance confinement et surveillance

La réglementation française et internationale sur les matières nucléaires ⁽¹⁾ prévoit que tout détenteur d'uranium connaisse, d'une part, les quantités d'uranium dont il dispose et, d'autre part, son enrichissement⁽²⁾ [Jalouneix et al., 2007]. Cet article porte sur les performances des méthodes d'analyse du spectre de rayonnements de l'uranium, pour déterminer l'enrichissement d'un échantillon d'uranium.

Dans ce domaine, l'IRSN ne développe pas ses propres outils d'analyse mais utilise des logiciels du commerce. Le retour d'expérience montre que les incertitudes annoncées par ces logiciels ne sont pas toujours représentatives de l'erreur réellement commise et prennent assez mal en compte les réalités de terrain : il n'est pas rare de constater, sur des mesures d'enrichissement, des sous-estimations des incertitudes d'un facteur 1,5 à 3 [ITU Karlsruhe, 2005 ; Abousahl et al., 1996 ; Berlizov et al., 2007].

Ce constat est à l'origine des travaux présentés ici. L'objectif est de garantir la pertinence des résultats des mesures effectuées, notamment dans le cadre des inspections du contrôle national, et par suite d'assurer la crédibilité des mesures réalisées par l'IRSN.

Après avoir décrit l'organisation française de la protection et du contrôle des matières nucléaires, nous présentons la problématique spécifique à la mesure de l'enrichissement de l'uranium par spectrométrie, les outils utilisés et les travaux réalisés à l'IRSN, en collaboration avec la Société de calcul mathématique⁽³⁾, pour en déterminer les performances réelles.

(1) Matières susceptibles d'être utilisées pour la fabrication d'une arme nucléaire, telles que définies dans le Code de la défense. Cet article ne traite que du cas particulier de l'uranium.

(2) Ratio entre la masse de l'isotope 235 de l'uranium et la masse totale d'uranium, généralement exprimé en pourcentage.

(3) Société de calcul mathématique, SA 111, Faubourg Saint Honoré, 75008 Paris.

Protection et contrôle des matières nucléaires

En France, la détention de matières nucléaires est réglementée par un ensemble de textes (Code de la défense, décrets, arrêtés), qui définit précisément les matières concernées et les obligations des détenteurs, et qui met en place le contrôle national. La mise en œuvre de ce contrôle relève du service de Sécurité des infrastructures économiques et nucléaires (SIEN). Ce service est placé sous l'autorité du haut fonctionnaire de défense et de sécurité (HFDS) du ministre en charge de l'Industrie et dispose du concours technique de la Direction de l'expertise nucléaire de défense de l'IRSN.

Le titulaire d'une autorisation de détention de matières nucléaires est chargé d'effectuer le contrôle, dit de premier niveau, qui doit être exhaustif. À ce titre, il doit connaître à tout moment la qualité et la quantité des matières nucléaires qu'il détient. Pour cela, il doit notamment tenir une comptabilité des matières nucléaires détenues dans l'installation, assurer le suivi de ces matières – c'est-à-dire connaître leur localisation, leur usage et leur transformation – et vérifier par des inventaires périodiques que la situation physique des matières nucléaires est conforme aux données de la comptabilité locale.

L'application correcte de la réglementation par les exploitants fait l'objet d'un contrôle dit de deuxième niveau : des inspections dans les installations sont réalisées par le SIEN, avec le concours de l'IRSN. Ce dispositif d'inspections ne vise pas à effectuer un contrôle à la place de l'exploitant mais à vérifier l'efficacité du système mis en œuvre par le titulaire de l'autorisation, conformément aux engagements pris.

Inspections avec mesures

La plupart des inspections portent sur des aspects organisationnels, administratifs ou réglementaires. Concernant le suivi physique des matières nucléaires, un des contrôles consiste à réaliser des inspections dites renforcées, qui donnent lieu à des vérifications par des mesures physiques. Ces inspections peuvent concerner toutes les étapes du cycle du combustible. La mise en œuvre de moyens de mesure par les inspecteurs permet de produire des résultats contradictoires de ceux de l'exploitant, qui permettent de vérifier la qualité des moyens de mesure d'une installation et la justesse des résultats exploités pour le suivi. Il est clair que, pour être crédible, tant vis-à-vis des autorités que des exploitants, les inspecteurs doivent garantir la pertinence de leurs résultats de mesure.

Les méthodes de mesure utilisées par les inspecteurs sont fondées sur des méthodes classiques de mesure non destructives, adaptées

aux contraintes particulières imposées par le cadre de l'inspection. Il s'agit principalement des techniques de spectrométrie γ et des mesures neutroniques passives. Tout d'abord, les dispositifs de mesure doivent être transportables. Les locaux où sont réalisées les mesures sont peu, voire mal adaptés à la prise de mesures. Cette contrainte conduit les inspecteurs à travailler dans des conditions plus difficiles que celles d'un laboratoire de mesures. L'espace de mesures n'est souvent que le stockage lui-même ou un local proche. Enfin, les mesures en inspection sont des mesures non destructives, en général indirectes, car les matières nucléaires sont enfermées dans des conteneurs qui créent un écran entre les matières et l'appareil de mesure. Les conteneurs étant rarement transparents, il faut travailler avec des hypothèses sur la nature physico-chimique de la matière nucléaire, sur la constitution (nature, épaisseur...) de son ou de ses conteneurs, sur le positionnement de la matière dans le conteneur, sur la nature éventuelle de la matrice⁽⁴⁾. Ces hypothèses conditionnent les traitements associés et, par suite, les résultats des mesures, sachant que ces derniers seront confrontés aux déclarations de l'exploitant.

Mesure d'enrichissement par spectrométrie gamma

Cet article traite uniquement des performances de l'une des méthodes de mesure des inspecteurs : l'analyse du spectre de rayonnements γ d'un échantillon d'uranium pour en déterminer l'enrichissement.

Principe [Reilly *et al.*, 1991]

Le phénomène de désintégration d'un élément radioactif s'accompagne en général de l'émission de rayonnements γ à des énergies caractéristiques des transitions qui ont lieu lors de la désexcitation des noyaux. Par exemple, l'isotope 235 de l'uranium émet de manière spontanée des photons γ d'énergies 144 keV, 163 keV, 185,7 keV, 205 keV... La spectrométrie γ a pour objet la mesure de ces rayonnements, au moyen d'un dispositif (association d'un détecteur et d'un analyseur multicanal, *figure 1*) qui permet de les classer en fonction de leur énergie : on obtient un spectre en énergie. Parmi tous les photons qui sont émis de manière isotrope, certains vont entrer dans le détecteur. Les phénomènes qui se produisent alors (absorption totale de l'énergie du photon dans le détecteur, diffusion Compton, rayonnement de freinage, création de paires...) se traduisent par un dépôt d'énergie dans le détecteur, constitué de la superposition d'une distribution continue et de raies

(4) La matière nucléaire peut être contenue dans une matrice, c'est-à-dire mélangée à d'autres produits : c'est le cas typique des déchets technologiques.

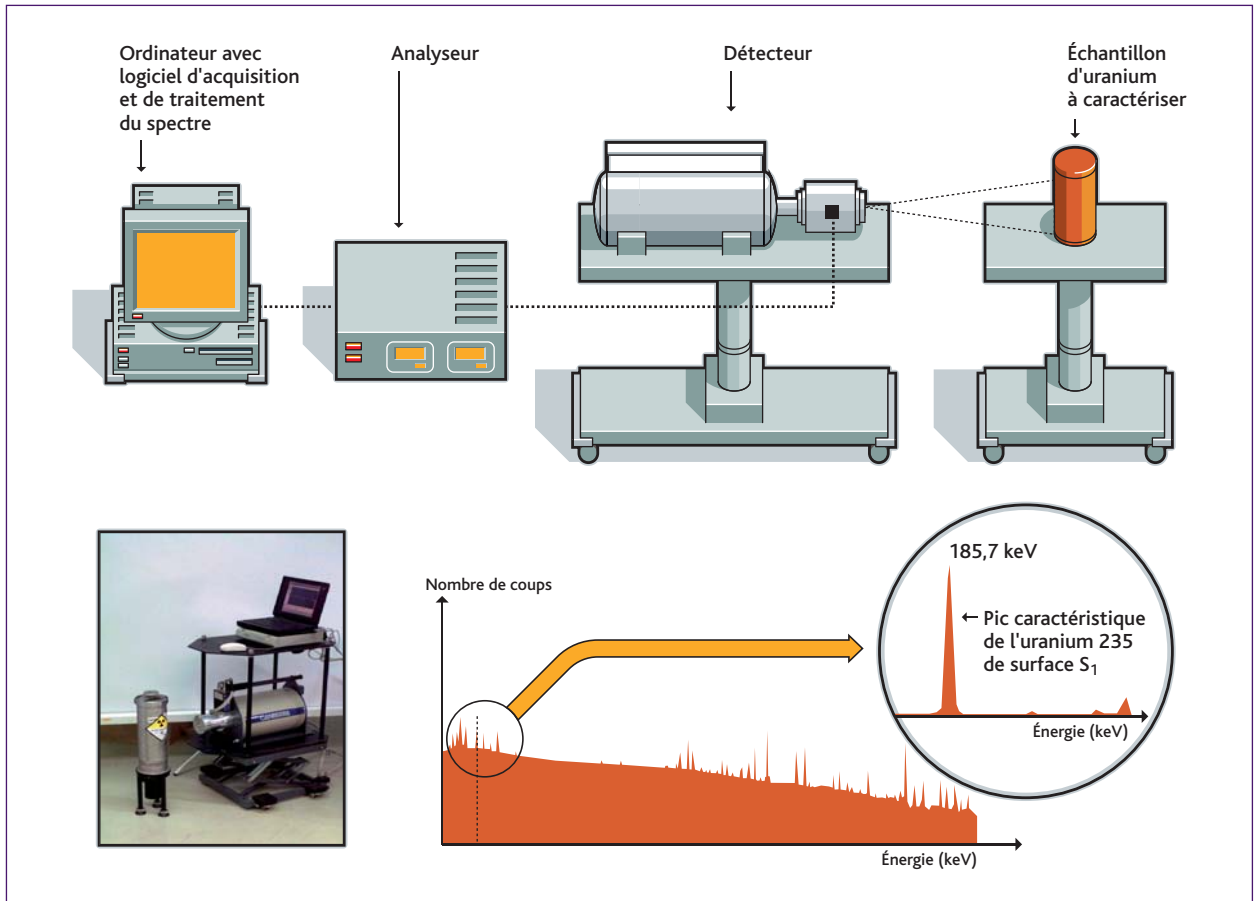


Figure 1 Chaîne de mesure de spectrométrie γ et exemple de spectre γ d'un échantillon d'uranium.

ou pics caractéristiques de l'énergie initiale du photon. La radioactivité étant un phénomène statistique, il faut compter suffisamment longtemps pour accumuler un nombre de coups suffisant dans le spectre d'énergie γ . L'apparition d'un pic à une énergie donnée permet non seulement d'identifier la présence d'un élément, mais également d'en calculer l'activité, en déterminant la surface nette du pic, c'est-à-dire la surface totale du pic hors du bruit de fond continu (figure 1).

Considérons un élément radioactif « i », d'activité a_i , émettant un photon γ d'énergie E_i . La surface nette du pic est proportionnelle à l'activité de l'élément selon la relation suivante :

$$1 \quad S_i = a_i \times \varepsilon_i \times P_i \times t \quad \text{avec} \quad a_i = \lambda_i \times N_i$$

- S_i : surface nette du pic d'absorption totale à l'énergie E_i ;
- a_i : activité de la source au début de la mesure ;
- λ_i : constante de décroissance de l'élément « i » ;
- N_i : nombre initial d'atomes radioactifs de l'élément « i » ;

- ε_i : efficacité absolue de détection, à l'énergie E_i , de l'élément « i » ;
- P_i : rapport d'embranchement de la raie mesurée, à l'énergie E_i , de l'élément « i » ;
- t : durée de l'acquisition du spectre.

Pour deux photons γ d'énergies E_1 et E_2 de deux éléments radioactifs, on peut calculer le ratio $e = N_1/N_2$:

$$2 \quad e = \frac{N_1}{N_2} = \frac{S_1}{S_2} \times \frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_1} \times \frac{P_2 \lambda_2}{P_1 \lambda_1}$$

Dans le cas de l'uranium, en considérant comme éléments radioactifs les deux isotopes 235 et 238, « e » est directement proportionnel à l'enrichissement et indépendant de la forme physico-chimique et des dimensions de l'échantillon d'uranium à caractériser.

Toute la difficulté consiste à choisir les énergies E_1 et E_2 pour déterminer correctement les facteurs s_1/s_2 et $\varepsilon_2/\varepsilon_1$ sachant que le terme $p_2 \lambda_2 / p_1 \lambda_1$ est obtenu à partir des tables de données nucléaires.

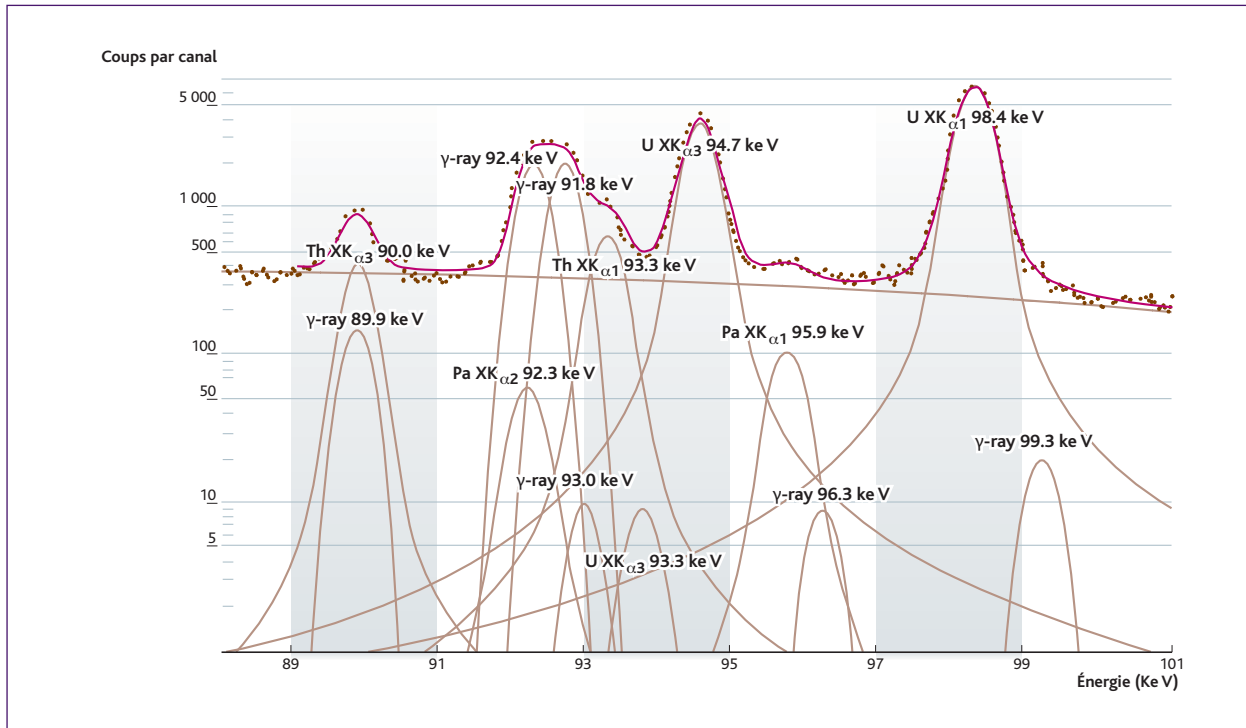


Figure 2 Analyse de la région 89-100 keV d'un spectre γ d'uranium.

Une stratégie possible d'analyse du spectre consiste à calculer $\varepsilon_2/\varepsilon_1$ pour des énergies E_1 et E_2 voisines. Dans ce cas, les différences d'efficacité sont faibles et négligeables au premier ordre : $\varepsilon_2/\varepsilon_1$ est proche de 1. Le facteur S_1/S_2 est obtenu expérimentalement par l'analyse du spectre γ . Pour l'uranium, la région des énergies de 89 à 100 keV est particulièrement intéressante, car elle présente de nombreuses raies des différents isotopes de l'uranium. Son analyse nécessite cependant l'utilisation d'algorithmes performants de déconvolution de pic, du fait de la superposition de nombreuses raies dans cette région (**figure 2**).

Une autre stratégie consiste à choisir des raies isolées dans une région du spectre moins complexe à analyser. Mais il faut alors évaluer correctement le terme $\varepsilon_2/\varepsilon_1$, ce qui est fait en général sur la base de modèles physiques ou empiriques d'évolution de l'efficacité de la détection en fonction de l'énergie.

Les chaînes d'acquisition et les logiciels

Plusieurs logiciels ont été développés spécifiquement pour déterminer l'enrichissement d'un échantillon d'uranium, sur la base des principes présentés au paragraphe précédent, chacun présentant des avantages et des inconvénients. Quel que soit le logiciel utilisé, il n'est pas nécessaire d'utiliser une source radioactive externe pour étalonner le système. S'agissant de ratio, le spectre γ de l'échantillon d'uranium contient en effet toute l'information nécessaire au calcul de l'enrichissement.

L'IRSN a choisi d'utiliser trois outils distincts, MGA [Gunnink *et al.*, 1994] (deux versions différentes existent, l'une commercialisée par la société Ortec, l'autre par la société Canberra), FRAM [Sampson *et al.*, 1999 ; ITU Karklsruhe, 2005] et IGA [Simon *et al.*, 2005], développés respectivement par Lawrence Livermore National Laboratory, Los Alamos National Laboratory et le CEA.

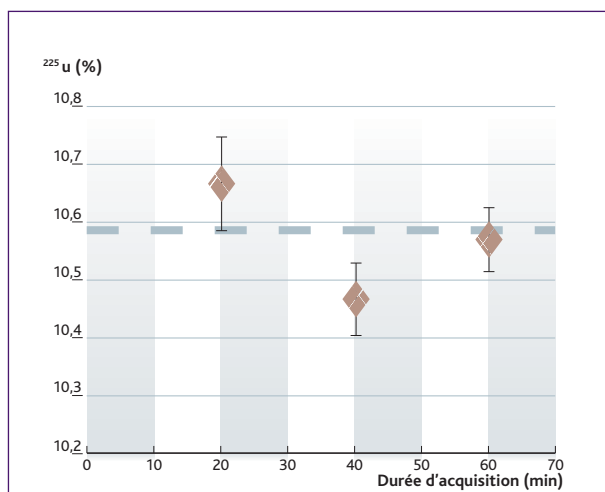
MGA et FRAM disposent de multiples options, qui ont été ajoutées au fur et à mesure des mises à jour. Il est par exemple possible d'utiliser les spectres de deux détecteurs avec MGA, il est possible d'analyser avec FRAM diverses régions du spectre de rayonnements γ .

Le choix de l'IRSN est d'utiliser MGA et FRAM de la manière suivante :

- MGA a été optimisé pour l'analyse du spectre de rayonnements γ et X dans la plage d'énergies de 0-300 keV. La chaîne de spectrométrie γ doit alors être constituée d'un détecteur germanium de type planaire de résolution inférieure à 650 eV à 122 keV ;

- FRAM analyse le spectre de rayonnements γ de 0 à 1 024 keV. Avec ce dispositif, la chaîne de spectrométrie γ doit être constituée d'un détecteur germanium de type coaxial.

IGA offre l'avantage d'avoir directement été conçu pour ne pas travailler à gain fixe (la plage d'énergie analysée est libre) et ne pas imposer de critères sur la résolution du spectre. Tous les spectres acquis pour une analyse avec MGA ou FRAM peuvent être analysés par IGA.



	^{235}U (%)	Écart-type estimé par le code de calcul
20 min	10,66	0.08
40 min	10,46	0.05
60 min	10,56	0.05

Tableau 1

Chacun de ces systèmes offre des performances différentes suivant les configurations expérimentales. Par exemple, FRAM, qui analyse les photons γ des hautes énergies, sera moins sensible aux effets d'écrans que MGA.

Simplicité et complexité de la mesure

L'intérêt principal des techniques de spectrométrie γ réside dans leur souplesse de mise en œuvre par rapport aux techniques de radiochimie, qui sont longues à réaliser, contraignantes en termes de radioprotection et par nature génératrices de déchets. Elles permettent en effet une mesure directe de l'émission de rayonnements γ – mesure non destructive – des isotopes 235 et 238 de l'uranium. La première étape consiste à acquérir un spectre de rayonnements γ . L'opérateur utilise pour cela une chaîne d'acquisition, constituée d'un détecteur germanium et d'un analyseur multicanal piloté depuis un ordinateur. Il positionne le détecteur à une cinquantaine de centimètres du produit à caractériser et démarre l'acquisition du spectre. Une fois la statistique de comptage suffisante (une acquisition peut durer typiquement une demi-heure), il arrête l'acquisition et réalise une sauvegarde du spectre. La deuxième étape consiste alors en l'analyse du spectre par l'outil d'analyse, qui donne le résultat de la mesure d'enrichissement, après un temps de calcul de quelques secondes, voire instantanément selon les cas.

La procédure à mettre en œuvre est donc simple mais la complexité du problème à résoudre vient justement de cette simplicité ! Les utilisateurs disposent d'outils permettant d'obtenir des résultats indépendamment de la forme physico-chimique de l'uranium et indépendamment du conditionnement des matières. Il n'y a aucun étalonnage préalable utilisant des produits de référence. Seule est utilisée l'information disponible dans le spectre pour l'obtention du résultat. Mais quelle confiance peut-on avoir sur la valeur obtenue ? Le logiciel de calcul présente un résultat associé à une incertitude mais celle-ci, de par la méthode d'analyse, ne prend pas en compte les conditions expérimentales liées à la nature du produit à caractériser et aux choix de l'opérateur (réglage du détecteur, distance et temps d'acquisition...). Et l'on constate en pratique que les résultats ne sont pas toujours facilement interprétables.

L'exemple de résultats ci-contre illustre notre propos. Il s'agit d'un échantillon d'uranium dont la valeur d'enrichissement est connue et égale à 10,6 %. L'échantillon est pur, le conditionnement est connu, et il n'y a pas d'écran. L'analyse de spectrométrie γ avec le logiciel MGA, réalisée pour trois sauvegardes du spectre, respectivement après vingt minutes, quarante minutes et une heure d'acquisition, donne les résultats du **tableau 1**.

On constate une bonne précision des résultats, avec un enrichissement en ^{235}U qui varie entre 10,5 et 10,7 %. L'erreur expérimentale est de 0,1 % au lieu d'un écart-type calculé plutôt de 0,05 % (**tableau 1**), soit une sous-estimation d'un facteur 2. Considérons par exemple un échantillon d'uranium contenant 100 grammes d'uranium 235. La quantité d'uranium total peut être calculée en divisant ces cent grammes par le pourcentage d'enrichissement de l'uranium en isotope 235. Les résultats obtenus varient de 935 g à 952 g d'uranium respectivement, pour des valeurs d'enrichissement comprises entre 10,7 et 10,5 % (cette estimation ne tient pas compte de l'incertitude estimée par le code de calcul). Ce constat est à rapprocher du fait que la comptabilité des matières nucléaires est tenue au gramme.

Évaluation empirique des incertitudes

L'IRSN a mis en œuvre une démarche expérimentale pour maîtriser les incertitudes des mesures d'enrichissement. Cette démarche consiste à faire varier, dans le cadre d'un plan d'expériences, les paramètres qui ont une influence sur le résultat d'une mesure d'enrichissement.

Fabrication de sources d'uranium de référence

Afin de mener à bien ce plan d'expériences, l'IRSN s'est doté de différentes sources d'uranium d'enrichissement certifié. Il a été décidé de faire fabriquer des sources scellées, conformes aux normes

type de capsule	e (mm)	d (mm)
A	5	38
B	5	50
C1	20	48
C2	26	48
C3	28	48
C4	33	50



Tableau 2

Numéro de la source	Matière	Type de capsule	Enrichissement (%)	Masse U (g)	Masse ²³⁵ U (g)
1	U ₃ O ₈	B	0,34	16,8	0,06
2	U ₃ O ₈	B	0,54	15,3	0,08
3	U ₃ O ₈	B	0,71	27,4	0,19
4	U ₃ O ₈	C3	0,71	120,9	0,86
5	U ₃ O ₈	B	1,53	14,7	0,22
6	U ₃ O ₈	C4	3,04	96,5	2,93
7	U ₃ O ₈	B	5,49	12,5	0,68
8	U ₃ O ₈	B	7,06	14,6	1,03
9	U ₃ O ₈	B	11,30	32,6	3,69
10	U ₃ O ₈	B	14,21	12,9	1,83
11	U ₃ O ₈	A	21,90	8,7	1,91
12	U ₃ O ₈ + CaF ₂	B	26,08	13,8	3,60
13	U ₃ O ₈	C3	29,19	87,5	25,52
14	U ₃ O ₈	A	45,11	8,5	3,83
15	U ₃ O ₈	A	45,11	10,5	4,75
16	U ₃ O ₈	A	45,11	10,8	4,89
17	U ₃ O ₈	A	57,04	9,9	5,64
18	U ₃ O ₈ + CaF ₂	C1	57,04	5,5	3,11
19	U ₃ O ₈	A	68,04	12,3	8,40
20	U ₃ O ₈	C2	89,30	86,0	76,84

Tableau 3 Caractéristiques des sources d'U₃O₈.

Afnor (mécanique et étanchéité). Au final, une année a été nécessaire à leur obtention, depuis l'élaboration du cahier des charges, le choix du fournisseur (Cerca Lea), l'approvisionnement de la matière, la qualification de l'emballage, la réalisation des sources, la validation du protocole de transport par les autorités, jusqu'à la recette et la livraison. Le conditionnement des sources d'uranium répond à la triple exigence suivante :

- garantir pour la capsule une étanchéité et une résistance mécanique conformes aux normes sur les sources scellées ;
- optimiser l'épaisseur de l'emballage pour minimiser l'atténuation des photons γ ;
- disposer de sources d'épaisseur connues, dont certaines d'épaisseur

infinie⁽⁵⁾ (à l'énergie de 185,7 keV, qui est l'une des raies d'absorption totale caractéristique de l'isotope ²³⁵U de l'uranium).

Vingt sources d'uranium ont été fabriquées. La matière se présente sous forme de poudre tassée d'U₃O₈. Pour deux sources, la poudre d'U₃O₈ est mélangée à de la fluorine. La gamme des enrichissements est comprise entre 0,3 et 89 %. Les quantités de matière demandées ont nécessité six formats différents de conditionnement (capsule cylindrique en résine). Les caractéristiques sont résumées dans les **tableaux 2 et 3**.

(5) Un échantillon est dit d'épaisseur infinie, pour une énergie donnée, lorsque toute augmentation de son épaisseur est sans effet sur le rayonnement émis à cette énergie.

Définition du plan d'expériences

L'objet du plan d'expériences est de démontrer l'influence ou l'absence d'influence de certains paramètres sur le résultat de la mesure de l'enrichissement. Cinq paramètres ont été retenus afin de reproduire la plupart des configurations de mesure rencontrées effectivement sur le terrain :

- l'enrichissement de l'uranium, sur la base des sources d' U_3O_8 qui présentent des teneurs en ^{235}U sur toute la gamme, depuis l'uranium appauvri jusqu'à l'uranium très enrichi ; seize sources parmi les vingt ont été retenues (les sources n° 3, 15, 16 et 18 du **tableau 3** n'ont pas été utilisées pour le plan d'expériences) ;

- la distance entre la source et le détecteur. Les mesures sont effectuées à deux distances différentes : 10 cm (distance minimale recommandée pour ne pas subir le phénomène de sommation de pics) et 45 cm (distance de mesure des fûts de déchets) ;

- l'épaisseur d'écran interposé entre la source et le détecteur, afin d'évaluer l'influence du conditionnement. Les mesures sont effectuées sans écran et avec deux écrans d'acier inoxydable de 2 mm et 6 mm ;

- la matrice⁽⁶⁾ dans laquelle peut être conditionné l'uranium afin de reproduire un conditionnement caractéristique de fût de déchets. Les mesures sont réalisées avec une maquette de fût de déchet de 200 litres, contenant des matrices vinyliques de masse volumique 0,2 g/cm³ (cas moyen généralement rencontré) et 0,4 g/cm³ (cas pénalisant, également rencontré sur le terrain), au milieu desquelles est déposée la source d'uranium ;

- l'imprécision du réglage du gain. À partir du gain optimal de l'analyseur de spectre (configuration n° 1 du **tableau 4**), le réglage du gain est décalé de ± 3 canaux (configurations 2 et 3).

Les paramètres de sortie du plan d'expériences sont :

- la différence entre le résultat attendu (valeur certifiée du matériau de référence) et le résultat donné par le logiciel d'analyse ;

- l'incertitude donnée par le logiciel d'analyse.

Le **tableau 4** résume les configurations de mesure réalisées pour chaque source d'uranium. Le plan d'expériences représente un total de 224 mesures : 16 sources et 14 mesures par source. La configuration n° 1 est la configuration dite de base : la source, sans écran autre que son conditionnement, est placée à 10 cm du détecteur avec un réglage optimal de la chaîne de mesure. Le plan a été construit de manière à pouvoir étudier les influences respectives des paramètres « écran », « matrice » et « gain ». Il faut noter qu'en présence de matrice, la distance ne peut pas être égale à 10 cm, car le rayon du fût déchet est supérieur à cette distance. Des mesures de répétabilité ont également été réalisées dans cette configuration.

(6) La matrice peut être considérée comme un écran mais les corrections apportées étant différentes, son influence est traitée indépendamment.

Numéro de la configuration	Écran (mm)	Distance (cm)	Matrice (g/cm ³)	Gain
1	0	10	0	1
2	0	10	0	2
3	0	10	0	3
4	2	10	0	1
5	2	45	0	1
6	6	10	0	1
7	6	45	0	1
8	6	10	0	2
9	6	10	0	3
10	0	45	0	1
11	0	45	0,2	1
12	0	45	0,4	1
13	0	45	0,4	2
14	0	45	0,4	3

Tableau 4 Acquisitions réalisées pour chaque enrichissement du plan d'expériences.

Ce plan d'expériences est répété pour chaque dispositif MGA, FRAM et IGA. Trois chaînes d'acquisition ont en fait été utilisées en parallèle : la première était dédiée aux analyses avec la version de MGA commercialisée par Canberra (MGAU), la deuxième était dédiée aux analyses avec la version de MGA commercialisée par Ortec (MGA++ associé au module U235View), la troisième était dédiée aux analyses avec FRAM. Tous les spectres acquis pour une analyse avec MGA ou FRAM pouvant être analysés par IGA, les trois chaînes d'acquisition peuvent être utilisées pour caractériser les performances d'IGA.

Résultat du plan d'expériences

L'analyse des résultats du plan d'expériences n'a été réalisée, pour l'instant, que pour le logiciel MGA (MGAU version 2.2), pour la version commercialisée par Canberra. Les résultats présentés dans ce qui suit ne concernent donc que ce logiciel.

Définition d'un test d'arrêt

À partir de quelle durée d'acquisition du spectre, la statistique de comptage n'a-t-elle plus d'influence sur le résultat de la mesure et sur l'incertitude associée ? Les éditeurs des codes de mesure d'enrichissement ne donnent quasiment pas d'indications à ce sujet.

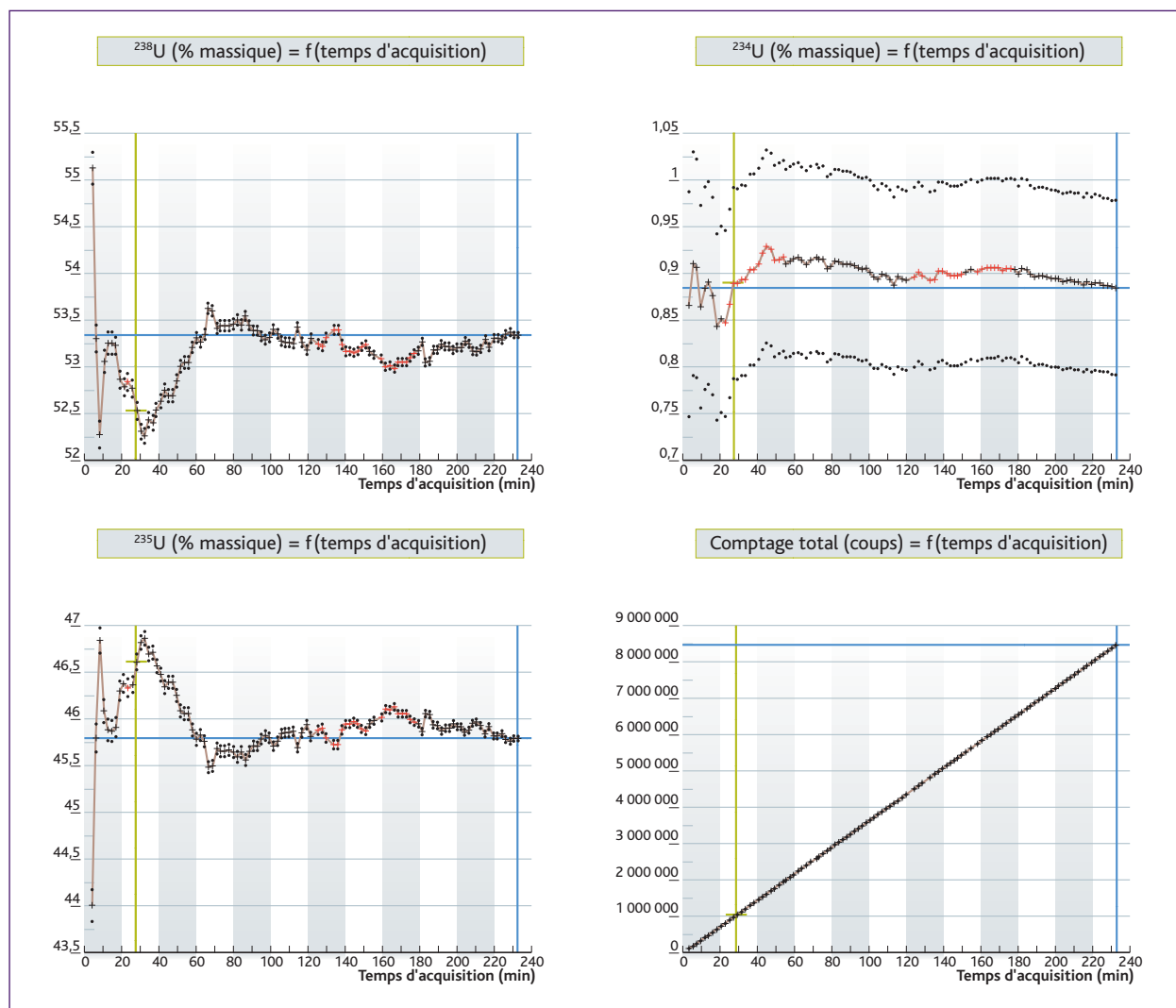


Figure 3 Évolution en fonction du temps des teneurs des différents isotopes de l'uranium et du comptage total.

Cette difficulté a conduit au développement par l'IRSN d'un logiciel, AutoISO_PLUM [Dufour *et al.*, 2006], qui permet à l'opérateur :

- de lancer un comptage par l'intermédiaire d'une chaîne de spectrométrie γ ;
- d'effectuer une analyse du spectre ainsi acquis à intervalles de temps réguliers. Cette analyse est réalisée par les différents codes de calcul dont dispose le laboratoire (MGA, FRAM et IGA) ;
- de visualiser une série de graphes présentant pour chaque isotope son abondance relative et l'incertitude donnée par le code en fonction de la durée d'acquisition du spectre. La **figure 3** montre un exemple de résultats de mesure.

À partir de l'analyse de ces courbes, l'opérateur prend la décision de stopper le comptage dès lors qu'il estime que compter plus

longtemps ne modifie pas significativement le résultat de la mesure. Les résultats convergent, c'est-à-dire que l'abondance relative et son incertitude cessent d'évoluer en fonction du temps et ceci pour chaque isotope.

On conçoit aisément l'intérêt d'un test d'arrêt automatique, afin de s'affranchir du jugement de l'opérateur pour stopper l'acquisition. Pour définir ce test, il a été nécessaire de réaliser les acquisitions et analyses d'enrichissement prévues dans le plan d'expériences en utilisant AutoISO_PLUM. L'objectif était de disposer d'analyses à intervalles de temps réguliers, avec une mesure finale dont la statistique de comptage est bien supérieure à la statistique nécessaire pour observer la convergence des résultats. Pour la configuration n°1, cela a conduit à des durées d'acquisition d'une à plusieurs

heures. Pour les configurations de mesure en présence d'une matrice (n°11 à 13), les durées d'acquisition pouvaient atteindre plusieurs jours. Il n'a pas été possible de conduire tous les essais de cette manière, notamment pour les configurations 13 et 14. Ainsi, seules 140 mesures ont été utilisées pour concevoir le test d'arrêt automatique.

La première idée pour concevoir un test d'arrêt automatique est d'exploiter la forme des courbes donnant les abondances relatives des différents isotopes en fonction du temps d'acquisition. Plusieurs algorithmes ont été testés :

- critères dits du max-min, de la moyenne : l'ensemble des points d'une série d'enregistrements consécutifs est étudié de manière simultanée, soit en calculant la moyenne de la série, soit en faisant la différence entre le maximum et le minimum de la série. Le résultat obtenu est comparé à un seuil prédéfini. Le début de la convergence correspond au premier point de la série pour laquelle le résultat obtenu est inférieur au seuil ;

- critère dit des pentes successives : l'ensemble des points d'une série d'enregistrements consécutifs est étudié de manière simultanée en calculant les coefficients des pentes entre les points successifs de la série. Si tous les coefficients sont inférieurs à un seuil fixé, alors la série de points est considérée comme appartenant à la zone de début de convergence. L'acquisition des mesures est alors arrêtée au premier point de la série qui correspond au premier point de convergence ;

- critère dit de l'écart-type relatif (ETR). Ce critère considère le quotient de l'écart-type des enrichissements mesurés sur une série de points consécutifs par la moyenne de cette même série. L'écart-type calcule la dispersion des valeurs de la série de données : plus il est faible, plus les données sont proches. Le fait de diviser par la moyenne de cette même série permet de normaliser l'écart-type par rapport aux valeurs sur lesquelles il porte.

La conclusion de cette étude est la suivante : les algorithmes testés ne sont pas suffisamment robustes, même si le critère de l'écart-type relatif semble le plus pertinent. Les formes des courbes sont trop différentes les unes des autres et trop chaotiques pour trouver des valeurs de seuils permettant un arrêt, à coup sûr, dans la zone de convergence.

Compte tenu des temps d'acquisition, qui dépendent fortement de la fluence de la source étudiée, il a été choisi de ne plus présenter d'évolution en fonction du temps mais en fonction de la surface nette n , mesurée dans le pic à l'énergie 143 keV de l'isotope 235 de l'uranium. C'est un paramètre du spectre qui est directement représentatif de la statistique de la mesure et qui est sensible à tous les paramètres du plan d'expériences, mis à part le gain.

Pour s'affranchir du risque de ne pas détecter d'arrêt avec le critère en place (ETR) du fait du caractère chaotique de la courbe d'évolution, une loi empirique a été proposée pour définir un nouveau critère d'arrêt. Cette loi, notée n_C , est obtenue par lissage des valeurs de n obtenues aux instants marqués par le critère d'arrêt ETR pour différentes configurations du plan d'expériences, en utilisant le modèle $n_C = a \times U^b$, avec :

- n_C : surface nette mesurée dans le pic à 143 keV à la convergence suivant le critère d'arrêt ETR ;
- U : enrichissement mesuré ;
- a et b : paramètres dépendant des conditions de mesure.

Des abaques ont ainsi été construits pour l'ensemble de la gamme d'enrichissements, en fonction des conditions de mesure (présence ou non d'un écran ou d'une matrice, variation de la distance). Il a été possible de regrouper les informations suivant les classes décrites dans le **tableau 5**.

Condition de mesure	a	b
Sans écran, sans matrice D=10 cm	6 429	0,9267
Sans écran, sans matrice D=45 cm	2 907	1,0101
Avec écran, D=10 cm	4 872	0,89
Avec écran, D=45 cm	2 826	0,875
Avec matrice	2 477	0,7329

Tableau 5

Exemple d'utilisation : considérons la série de mesures du tableau 6 réalisées à 10 cm, sans écran ni matrice. Dans cet exemple, les spectres sont enregistrés toutes les deux minutes et l'analyse avec MGA donne, pour chaque spectre, une valeur d'enrichissement. Connaissant les conditions d'acquisition, on calcule la valeur de n_C . Cette valeur est comparée à la valeur n trouvée expérimentalement. Si cette dernière est supérieure à n_C , on arrête l'acquisition ; dans le cas contraire, l'acquisition est prolongée.

Dans l'exemple présenté, la mesure est arrêtée au bout de 86 minutes et fournit le résultat suivant : un enrichissement de 0,382 %, avec une incertitude relative de 8,9 %.

Analyse du plan d'expériences

L'influence des cinq paramètres du plan d'expériences est évaluée par l'écart relatif entre l'enrichissement mesuré et l'enrichissement certifié :

$$e = \frac{E_{\text{mesuré}} - E_{\text{certifié}}}{E_{\text{certifié}}}$$

Temps réel (min)	Enrichissement mesuré (%)	Incertitude relative (%)	n	$n_c = a \times U^b$	Test si $n > n_c$
80	0,388	9,0	2436	$6429 \times 0,388^{0,9267} = 2674$	non l'acquisition continue
82	0,383	9,1	2506	$6429 \times 0,383^{0,9267} = 2642$	non l'acquisition continue
84	0,384	8,9	2574	$6429 \times 0,384^{0,9267} = 2648$	non l'acquisition continue
86	0,382	8,9	2646	$6429 \times 0,382^{0,9267} = 2635$	oui arrêt de l'acquisition

Tableau 6 Exemple de relevé de mesures.

Une approche consiste à supposer l'existence d'une relation linéaire entre les variables d'entrée et la variable de sortie (écart relatif ou incertitude relative). L'utilisation des techniques de régression linéaire multiple sur l'ensemble des données du plan d'expériences conduit au calcul des coefficients de régression standardisés, qui permettent d'identifier les paramètres prépondérants. Un coefficient élevé traduit une influence importante. Les résultats obtenus sont présentés dans le **tableau 7**.

Cette approche globale permet de classer les résultats du paramètre le plus influent au paramètre le moins influent et de retenir principalement deux points :

- le « gain » n'a pas d'influence sur l'écart relatif ;
- le paramètre « matrice » a la plus forte influence sur l'écart relatif.

Une analyse plus fine du plan d'expériences est nécessaire pour tirer des enseignements sur les performances de MGA en fonction des conditions expérimentales. Pour cette analyse, nous regardons non seulement l'écart relatif e mais également l'incertitude relative i fournie par le code.

Les mesures du plan d'expériences ont été regroupées de la manière suivante :

- trois classes d'enrichissement : $E < 1\%$, $1\% < E < 20\%$ et $E > 20\%$;
- sept conditions de mesure, tenant compte des paramètres que sont la distance, la présence d'un écran et d'une matrice. Ces conditions sont numérotées de 1 à 7 dans le **tableau 8**, du cas n° 1 le plus simple (distance de 10 cm sans écran) au cas n° 7 le plus complexe (matrice de $0,4 \text{ g/cm}^3$).

Pour chaque sous-ensemble de mesures du plan d'expériences, on calcule les paramètres :

- valeur moyenne de e ;
- valeur moyenne de i ;
- valeur moyenne de e/i .

Le **tableau 8** présente l'ensemble des résultats.

Écart relatif e	
Paramètre	Coefficients de régression standardisés
Matrice	0,374
Enrichissement	-0,106
Distance	0,102
Écran	0,084
Gain	0,006

Tableau 7 Coefficients de régression standardisés.

Si les incertitudes calculées par MGA sont correctes, le terme e/i doit être proche de 1. Une valeur inférieure à 1 est acceptable dans le sens où l'incertitude encadre l'écart relatif observé. Une valeur supérieure à 1 traduit le fait que l'incertitude est sous-estimée et qu'il est alors nécessaire de la corriger ; une estimation du facteur correctif est égale à e/i .

$e < 1\%$

Dans la gamme des enrichissements inférieurs à 1 %, les incertitudes relatives calculées par le logiciel sont d'une manière générale supérieures à celles constatées dans les deux autres gammes : de l'ordre de 10 % pour les conditions de mesure simples (n° 1, 2 et 3) et de l'ordre de 20 à 25 % pour les conditions de mesure complexes (n° 4, 5, 6, 7). C'est dans cette gamme de mesures que le logiciel MGA est le moins performant.

Par ailleurs, les incertitudes relatives sont du même ordre de grandeur que les écarts relatifs réellement constatés, sauf pour les conditions de mesure 4 et 5. Dans ces conditions, en présence d'une épaisseur d'écran de 6 mm d'acier, les incertitudes relatives sont surestimées d'un facteur supérieur à trois par rapport aux écarts relatifs. MGAU utilise des énergies d'émission de rayonnements γ dans la plage 80-130 keV. Ce sont des énergies faibles, qui sont rapidement atténuées par la présence d'un écran. À titre d'exemple,

Condition de mesures N		E < 1%			1% < E < 20%			E > 20%		
		\bar{e}	\bar{i}	\bar{e}/\bar{i}	\bar{e}	\bar{i}	\bar{e}/\bar{i}	\bar{e}	\bar{i}	\bar{e}/\bar{i}
1	Distance 10 cm Pas d'écran	7	7,8	0,9	0,6	1	0,6	0,8	0,9	1,1
2	Distance 45 cm Pas d'écran	6,4	11,3	0,5	2,0	1,4	1,3	0,8	1,8	0,8
3	Distance 10 cm Écran 2 mm	12,4	9,9	1,3	1,3	1,4	0,9	1,4	1,3	1,4
4	Distance 10 cm Écran 6 mm	6,5	21,1	0,3	3,5	2,1	1,7	4,0	1,8	2,3
5	Distance 45 cm Écran 6 mm	5,9	26,2	0,2	3,4	2,9	1,2	4,2	2,5	2,1
6	Matrice 0,2 g/cm ³	27,4	18,4	1,6	3,3	3,0	1,3	7,2	3,0	2,2
7	Matrice 0,4 g/cm ³	27,3	23,9	1,2	3,3	3,8	1,1	9,4	3,9	2,4

Tableau 8 Moyennes de e , i , e/i en fonction des sept paramètres de mesure et des trois gammes d'enrichissements.

un écran en acier de 6 mm d'épaisseur atténue de 82 % le débit de dose d'un rayonnement γ de 100 keV. Ceci peut expliquer le fait que la présence d'un écran augmente l'incertitude de la mesure [Abousahl *et al.*, 1996].

1% < e < 20%

Dans la gamme des enrichissements compris entre 1 et 20 %, les incertitudes relatives calculées par le logiciel sont du même ordre de grandeur que les écarts relatifs réellement constatés, dans les deux autres gammes d'enrichissement. Par ailleurs, les incertitudes relatives sont croissantes en fonction du numéro de configuration et comprises entre 1 et 3,8 % tandis que les écarts relatifs varient de 0,6 à 3,5 %.

e > 20%

Dans la gamme des enrichissements supérieurs à 20 %, les incertitudes relatives calculées par le logiciel sous-estiment l'erreur réellement commise le plus souvent, notamment pour les configurations 5, 6 et 7 (le facteur correctif à appliquer est compris entre 2,1 et 2,4). Par ailleurs, les incertitudes relatives sont croissantes en fonction du numéro de configuration et comprises entre 0,9 et 3,9 %, tandis que les écarts relatifs varient de 0,8 à 9,4 %.

Comparaison avec les travaux du groupe NDA d'ESARDA

Les résultats présentés au chapitre précédent peuvent être comparés aux données disponibles dans la référence [Guardini, 2004], synthèse des travaux du groupe de travail d'ESARDA⁽⁷⁾ concernant les mesures non destructives (*Non Destructive Assay*).

Ce document propose en effet des valeurs de performance des méthodes de mesure et en définit la portée de la manière suivante : "*It is important to note that the performance values published in this document represent measurement performances that are realistically achievable under fairly controlled measurement conditions. The given performance values [...] should be [...] considered as a kind of reference and guideline for the users in assessing the performance and quality of their own measurements.*"

Concernant les méthodes d'analyse du spectre de rayonnements γ de l'uranium pour déterminer l'enrichissement d'un échantillon d'uranium, la référence [Guardini, 2004] propose des valeurs d'incertitude pour des échantillons d'oxyde d'uranium dans trois gammes d'enrichissements, avec deux valeurs de temps de comptage (**tableau 9**).

Les incertitudes du **tableau 9** sont identiques pour les gammes 2 % - 4 % et 5 % - 10 %. Cela conforte le choix qui a été fait, dans l'exploitation du plan d'expériences de l'IRSN, de définir une seule gamme de 1 à 20 %. De même, on peut comparer directement les valeurs d'incertitude de la gamme 0,3 à 0,7 % du **tableau 9** aux valeurs E < 1 % du **tableau 8**.

Les résultats du **tableau 9** sont présentés pour deux temps de comptage, 360 s et 3 600 s. Dans le paragraphe « Définition d'un test d'arrêt », nous avons expliqué que ce choix n'est pas le meilleur car le temps d'acquisition optimal à considérer dépend notamment de la fluence de la source étudiée. Nous pouvons supposer que la valeur

(7) ESARDA : *European Safeguard Research and Development Association*.

Enrichissement (%)	Temps de comptage (s)	r (%)	s (%)	t (%)
0,3 à 0,7	360	8	5	9,4
	3600	3	5	5,8
2 à 4	360	2	1	2,2
	3600	1	1	1,4
5 à 10	360	2	1	2,2
	3600	1	1	1,4

r : composante aléatoire de l'incertitude (random) ;

s : composante systématique de l'incertitude (systematic) ;

t : incertitude totale, égale à la somme quadratique de *r* et *s*, en les supposant indépendantes.

Tableau 9 "Performance values" proposées par le groupe de travail NDA d'ESARDA pour différents taux d'enrichissements d'uranium sous forme oxyde.

de 3 600 s correspond, pour les auteurs de la publication, au temps d'acquisition optimal, c'est-à-dire au temps correspondant au critère d'arrêt défini au paragraphe « Définition d'un test d'arrêt. »

Dans ces conditions, en comparant les valeurs des **tableaux 8** et **9**, on constate que :

■ pour $1\% < E < 20\%$; les valeurs du tableau 9 ($t = 1,4$) sont identiques aux résultats trouvés pour les conditions de mesure 1, 2 et 3 du tableau 8 ($\bar{e} \in [0,6 ; 2]$ et $\bar{t} \in [1 ; 1,4]$) ;

■ pour $E < 1\%$; les valeurs du **tableau 9** sont plus optimistes ($t = 5,8$), quoique du même ordre de grandeur, que les résultats trouvés pour les conditions de mesure 1, 2 et 3 du **tableau 8** ($\bar{e} \in [7 ; 12,4]$ et $\bar{t} \in [7,8 ; 11,3]$).

Cette comparaison montre la cohérence entre les *performance values* d'ESARDA et les résultats présentés ici. Toutefois les résultats présentés ici apportent des informations supplémentaires, en termes de performances, pour les enrichissements supérieurs à 20 % et pour des conditions de mesure plus complexes : présence d'un écran ou d'une matrice (cas n° 4, 5, 6 et 7 du **tableau 8**).

Synthèse

Les mesures du plan d'expériences ont été regroupées de la manière suivante :

- trois classes d'enrichissements : $E < 1\%$, $1\% < E < 20\%$ et $E > 20\%$;
- sept conditions de mesure, tenant compte des paramètres que sont la distance, la présence d'un écran et d'une matrice. Ces conditions sont numérotées de 1 à 7, du cas n° 1 le plus simple (distance de 10 cm sans écran) au cas n° 7 le plus complexe (matrice de $0,4 \text{ g/cm}^3$).

Les principaux enseignements sont les suivants :

■ une imprécision de ± 3 canaux du réglage du gain de la chaîne de mesure (influence de l'opérateur) n'a pas d'influence sur les résultats ;

■ le paramètre « matrice » a la plus forte influence sur les écarts relatifs constatés entre les valeurs mesurées et les valeurs certifiées ;

■ lorsque l'enrichissement est compris entre 1 et 20 %, les incertitudes relatives sont correctement déterminées. Elles sont comprises entre 1 (pas d'écran, distance de mesure de 10 cm) et 4 % (matrice de $0,4 \text{ g/cm}^3$) ;

■ lorsque l'enrichissement est supérieur à 20 %, les incertitudes relatives sont correctement déterminées, sauf lorsqu'il y a une matrice ou un écran de 6 mm d'acier. Dans ce cas, les incertitudes relatives calculées par le logiciel sont le plus souvent sous-estimées, et le facteur correctif à appliquer sur l'incertitude est compris entre 2,1 et 2,4 ;

■ lorsque l'enrichissement est inférieur à 1 %, les incertitudes relatives calculées par le logiciel sont d'une manière générale supérieures à celles constatées expérimentalement dans les deux autres gammes : de l'ordre de 10 % pour les conditions de mesure simples et de l'ordre de 20 à 25 % pour les conditions de mesure complexes (présence d'une matrice). C'est dans cette gamme de mesures que le logiciel MGA est le moins performant. En présence d'une épaisseur d'écran de 6 mm d'acier, les incertitudes relatives sont surestimées d'un facteur supérieur à trois par rapport aux écarts relatifs. MGAU utilise des énergies d'émission des rayonnements γ , dans la plage 80-130 keV, qui sont rapidement atténuées par la présence d'un écran, ce qui peut expliquer le fait que la présence d'un écran augmente l'incertitude de la mesure. Ceci ne devrait pas être le cas avec d'autres outils, qui utilisent des énergies dans une gamme incluant l'énergie à 1 001 keV, caractéristique d'un descendant de l'isotope 238 de l'uranium ;

■ les résultats obtenus sont comparables aux *performance values* proposées par le groupe de travail NDA d'ESARDA, tout en apportant des informations supplémentaires, en termes de performances, pour les enrichissements supérieurs à 20 % et pour des conditions de mesure plus complexes (présence d'un écran et d'une matrice).

Conclusion

Depuis le début des années 1990, plusieurs outils ont été développés pour déterminer l'enrichissement d'un échantillon d'uranium par l'analyse du spectre des rayonnements de l'uranium. Ces outils utilisent des moyens mathématiques complexes mais sont très simples d'utilisation : après l'acquisition du spectre, le logiciel analyse les raies contenues dans le spectre pour calculer le résultat recherché. Il n'est pas nécessaire d'utiliser une source radioactive externe pour étalonner le système :

le spectre des rayonnements de l'uranium contient en effet toute l'information nécessaire au calcul de l'enrichissement.

Dans des conditions de mesure optimales, les performances de ces logiciels sont connues et les incertitudes de mesure semblent correctement évaluées. Mais ce n'est pas toujours le cas des mesures réalisées dans le cadre des inspections du contrôle national. Il s'agit en effet de mesures réalisées sur le terrain, sur l'ensemble des produits qu'il est possible de rencontrer dans les différentes étapes du cycle du combustible. C'est pourquoi l'IRSN a décidé de mettre en œuvre une démarche expérimentale, dans le cadre d'un plan d'expériences, pour maîtriser les incertitudes des mesures d'enrichissement.

Les étapes suivantes ont été réalisées :

- fabrication de sources d'oxyde d'uranium avec des enrichissements régulièrement répartis, de l'uranium appauvri à l'uranium très enrichi ;
- acquisition de spectres dans le cadre d'un plan d'expériences, en faisant varier les paramètres pouvant avoir une influence sur le résultat d'une mesure d'enrichissement (enrichissement, distance, écran, matrice, gain) ;
- définition d'un test d'arrêt optimal de l'acquisition, qui tienne compte de la forme de l'évolution du résultat de la mesure en fonction de la durée d'acquisition. Ce test s'exprime

en fonction de la surface nette n mesurée dans le pic à 143 keV de l'isotope 235 de l'uranium, de l'enrichissement mesuré et des conditions de mesure ;

■ analyse des résultats du plan d'expériences pour la partie concernant l'outil MGA (MGAU version 2.2 commercialisée par Canberra). La même analyse devra être répétée pour les deux autres outils, FRAM et IGA, sachant que les acquisitions des spectres sont déjà réalisées ;

■ comparaison avec les travaux du groupe NDA d'ESARDA.

Au final, le plan d'expériences conçu et réalisé dans ce contexte, ainsi que son exploitation statistique ont permis de réévaluer les incertitudes de la détermination de l'enrichissement de l'uranium, en tenant compte des conditions expérimentales réellement constatées. Les valeurs des incertitudes ont été obtenues suivant une démarche parfaitement maîtrisée, ce qui leur confère un niveau de confiance supérieur à celui accordé aux valeurs annoncées par les codes de détermination de l'enrichissement. L'utilisation d'un outil comme le plan d'expériences a permis aux ingénieurs de l'IRSN d'améliorer significativement la qualité et la fiabilité des résultats de méthodes qu'ils utilisent couramment sur le terrain, dans le contexte du contrôle national des matières nucléaires.

Références

- S. Abousahl et al., *Applicability and limits of the MGAU code for the determination of the enrichment of uranium samples*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* 368 (1996) 443-448.
- AN. Berlizov et al., *Performance testing of the upgraded uranium isotopics multi-group analysis code MGAU*, *NIM Section A*, 575 (2007) 498-506.
- J.-L. Dufour et al., *AutoISO: a new acquisition and data review software for the use of isotopic composition analysis codes (MGA++, PCFRAM and IGA)*, *ESARDA Bulletin n°35* (2006), 2-9.
- S. Guardini (editor), *Performance Values for Non-Destructive Assay (NDA) Techniques applied to Safeguards*, *ESARDA Bulletin No. 32*, Mars 2004.
- R. Gunnink et al., *MGAU: a new analysis code for measuring U-235 enrichments in arbitrary samples*, *URCL-JC-114713*, *IAEA Symposium on International Safeguards*, Vienna, March 8-14, 1994.
- J. Jalouneix, D. Winter, *Protection et contrôle des matières nucléaires*, *Techniques de l'Ingénieur BN 3940*, juillet 2007.
- *Proceeding of the international workshop on Gamma Evaluation Codes for Plutonium and Uranium Isotope Abundance Measurements by High Resolution gamma Spectroscopy: Current Status and Future Challenges*, ITU Karlsruhe, November 14-16, 2005.
- D. Reilly et al., *Passive Nondestructive Assay of Nuclear Materials*, *NUREG/CR-5550*, LA-UR-90-732, March 1991.
- TE. Sampson, TA. Kelley, *PC/FRAM user manual version 4.2*, LA-UR-99-998, 1999.
- AC. Simon et al., *A new computer code for the automatic determination of the isotopic composition of actinides by X- and gamma-ray spectrometry*, *European Nuclear Conference*, Versailles 2005.